

⑪ Int. Cl.³
C 07 D 241/44
A 01 N 43/60
C 07 D 241/52

識別記号

庁内整理番号
7431—4C
7055—4H
7431—4C

⑬ 公開 昭和56年(1981)4月14日
発明の数 7
審査請求 未請求

(全 30 頁)

⑭ アルカンカルボン酸誘導体ならびにそれらの
合成方法及び同誘導体を含む除草剤組成物

⑮ 特 願 昭55—96960

⑯ 出 願 昭55(1980)7月17日

優先権主張 ⑰ 1979年7月17日 ⑱ オーストラ
リア(AU) ⑲ P.D. 9617

⑳ 発 明 者 アレクサンダー・サーバン
オーストラリア国ビクトリア31
08ドンカスター・マーブル・コ
ート3

㉑ 発 明 者 キース・ジエオフレイ・ワトソ
ン
オーストラリア国ビクトリア31

29ボックス・ヒル・ノース・メ
ドウエイ・ストリート36

㉒ 発 明 者 グラエメ・ジョン・フアーケ
ハルソン

オーストラリア国ビクトリア30
73リサーボア・ステイーネ・ス
トリート10

㉓ 出 願 人 アイシーアイ・オーストラリア
・リミテッド
オーストラリア国ビクトリア30
01メルボルン・ニコルソン・ス
トリート1

㉔ 代 理 人 弁理士 青木朗 外3名
最終頁に続く

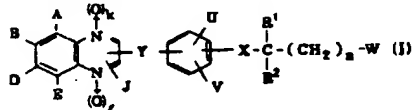
明 細 書

1. 発明の名称

アルカンカルボン酸誘導体ならびにそれらの
合成方法及び同誘導体を含む除草剤組成物

2. 特許請求の範囲

1. 一般式(I)の化合物またはそれらの塩:



(上記式(I)において、

A, B, D, E, J, U及びVは、水素、ハロ
ゲン、ニトロ、シアノ、チオシアノ、アミノ、
C₁₋₆アルキルアミノ、ジ(C₁₋₆アルキル)アミノ、
C₁₋₆アルキル、C₁₋₆ハロアルキル、C₂₋₆アルケ
ニル、C₃₋₇シクロアルキル、C₁₋₆アルコキシ、
C₁₋₆ハロアルコキシ、C₁₋₆アルキルチオ、C₁₋₆ア
ルキルスルフィニル、C₁₋₆アルキルスルホニル、
C₁₋₆ハロアルキルスルフィニル、C₁₋₆ハロアルカ
ルスルホニル、スルホ、C₁₋₆アルコキシスルホニ

(1)

ル、スルファモイル、N-(C₁₋₆アルキル)スル
ファモイル、N,N-ジ(C₁₋₆アルキル)スルファ
モイル、カルボキシ、(C₁₋₆アルコキシ)カルボ
キシ、カルバモイル、N-(C₁₋₆アルキル)カル
バモイル、N,N-ジ(C₁₋₆アルキル)カルバモイ
ル、フェニル、フェノキシ、フェニルチオ、なら
びに置換フェニル、置換フェノキシ及び置換フェ
ニルチオ基(各基において、フェニル環はハロゲ
ン、C₁₋₆アルキル、C₁₋₆ハロアルキル、C₁₋₆ア
ルコキシ、ニトロ及びシアノから成る群から選ば
れた1乃至3個の置換基で置換される)から成る
群から各々独立して選ばれ;

R¹が水素、C₁₋₆アルキル、C₂₋₆アルケニル、
C₂₋₆アルコキシアルキル、C₁₋₆ハロアルキル、ア
セチル、プロピオニル及びC₂₋₆アルコキシカルボ
ニルから成る群から選ばれ、且つR²が水素、C₁₋₆
アルキル、C₂₋₆アルケニル、C₂₋₆アルコキシアル
キル及びC₁₋₆ハロアルキルから成る群から選ばれ
るか;または、R¹及びR²が一様になつてメチレン、
エチリデン、プロピリデンもしくはイソプロピリ

(2)

アミン基を形成してもよく；

Wは、シアノ、チオカルバモイル、 $\begin{smallmatrix} \text{O} \\ \parallel \\ -\text{C}-\text{G} \end{smallmatrix}$ 及び
 $-\text{CH}_2\text{Z}$ （式中、Gは、ヒドロキシ、メルカプト、
 C_{1-10} アルコキシ、 C_{1-10} ハロアルコキシ、 C_{2-10}
アルケニルオキシ、 C_{2-10} アルキニルオキシ、
 C_{1-10} アルキルチオ、 C_{2-10} アルケニルチオ、
 C_{2-10} アルキニルチオ、 C_{3-7} シクロアルコキシ、
1もしくは2個の C_{1-4} アルキル基で置換された
 C_{3-7} シクロアルコキシ、フェノキシ、フェニルチ
オ、ベンジルオキシ、ベンジルチオ； C_{1-4} アルコ
キシ、アミノ、アンモニオ、シアノ、N-(C_{1-4}
アルキル)アミノ、N,N-ジ(C_{1-4} アルキル)ア
ミノ及びN,N,N-トリ(C_{1-4} アルキル)アンモニ
オからなる群から選ばれた1個の置換基で置換さ
れた C_{1-10} アルコキシ基；フェノキシ、フェニル
チオ、ベンジルオキシ及びベンジルチオ基（各基
において、フェニル環はハロゲン、ニトロ、シア
ノ、 C_{1-4} アルキル、 C_{1-4} ハロアルキル及び C_{1-4} ア
ルコキシから成る群から選ばれた1乃至3個の置
換基で置換される）；基OM（式中、Mは無機また

(3)

アルキル)アミノ、 C_{1-4} アルキル、 C_{1-4} ハロアル
キル、 C_{2-4} アルケニル、 C_{1-4} アルコキシ、 C_{1-4} ハ
ロアルコキシ、 C_{1-4} アルキルチオ、カルボキシ及
び(C_{1-4} アルコキシ)カルボニルから成る群から
各々独立して選ばれる；

Jが、水素、ハロゲン、ニトロ、シアノ、 C_{1-4}
アルキル及び C_{1-4} ハロアルキルから成る群から選
ばれる；

U及びVが、水素、ハロゲン、ニトロ、シアノ、
 C_{1-4} アルキル及び C_{1-4} ハロアルキルから成る群か
ら各々独立して選ばれる；

R¹が、水素、 C_{1-4} アルキル及び(C_{1-4} アルコキ
シ)カルボニルから成る群から選ばれる；

R²が水素及び C_{1-4} アルキルから選ばれる；

Wが基 $\begin{smallmatrix} \text{O} \\ \parallel \\ -\text{C}-\text{G} \end{smallmatrix}$ 及び $-\text{CH}_2\text{Z}$ （式中、Gはヒドロキ
シ、 C_{1-10} アルコキシ、 C_{1-10} ハロアルコキシ、
 C_{2-10} アルケニルオキシ、 C_{2-10} アルキニルオキシ、
 C_{1-10} アルキルチオ、 C_{2-10} アルケニルチオ、 C_{2-10}
アルキニルチオ、シクロヘキシルオキシ、フェノ
キシ、ベンジルオキシ； C_{1-4} アルコキシ、アミノ、

(5)

は有機塩基のカチオンである）；基 $-\text{NHBO}_2\text{R}^3$
（式中、R³は C_{1-10} アルキル及び C_{1-10} ハロアル
キルから選ばれる）；基 $-\text{NR}^4\text{R}^5$ （式中、R⁴及びR⁵
は水素、 C_{1-4} アルキル、フェニル及びベンジルか
ら成る群から各々独立して選ばれるかまたはR⁴及
びR⁵が一緒になって複素環を形成する）；ならび
に、基 $-\text{O}-\text{N}=\text{R}^6$ （式中、R⁶は C_{1-10} アルキリ
デン基である）から成る群から選ばれる；そして、Zは
ハロゲン、ヒドロキシ、メルカプト、 C_{1-10} アル
コキシ、 C_{1-10} ハロアルコキシ、 C_{1-10} アルキルチ
オ及び WNR^4R^5 （式中、R⁴及びR⁵は前記で通した
通り）から選ばれる）から成る群から選ばれる；

X及びYは酸素及び硫黄から各々独立して選ば
れる；

k及びlは0及び1から各々独立して選ばれる；
そして

nは0,1もしくは2である。

2. 前記一般式(I)において、

A, B, D及びEが、水素、ハロゲン、ニトロ、
シアノ、アミノ、 C_{1-4} アルキルアミノ、ジ(C_{1-4}

(4)

N-(C_{1-4} アルキル)-アミノ、N,N-ジ(C_{1-4}
アルキル)アミノ及びN,N,N-トリ(C_{1-4} アルキ
ル)アンモニオから成る群から選ばれた1個の置
換基で置換された C_{1-10} アルコキシ基；基 $-\text{NR}^4\text{R}^5$
（式中、R⁴及びR⁵は水素、 C_{1-4} アルキル及びフ
ェニルから各々独立して選ばれる）；基OM（式
中、Mはアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属
イオンもしくはアンモニウムイオン HNR^4R^5 ⁺
（式中、R⁴、R⁵及びR⁶は水素、 C_{1-4} アルキル、
 C_{1-4} ヒドロキシアルキル、フェニル及びベンジ
ルから成る群から各々独立して選ばれる）である）；
基 $-\text{NHBO}_2\text{R}^3$ （式中、R³は C_{1-4} アルキルである）；
ならびに、基 $-\text{O}-\text{N}=\text{R}^6$ （式中、R⁶は C_{1-10} アルキ
リデン基である）から成る群から選ばれる；そして、
Zはハロゲン、ヒドロキシ、メルカプト、 C_{1-10}
アルコキシならびに基 $-\text{NR}^4\text{R}^5$ （式中、R⁴及びR⁵
は水素、 C_{1-4} アルキル及びフェニルから成る群か
ら各々独立して選ばれる）から成る群から選ばれる；
Yが酸素及び硫黄から選ばれる；
Xが酸素であり；

(6)

k及びlが0及び1から各々独立して選ばれ；

そして

nが0もしくは2である

特許請求の範囲第1項記載の化合物。

3. 前記一般式(I)において、

A, B, D及びEが、水素、ハロゲン、ニトロ、 C_{1-6} アルキル、 C_{1-6} ヘロアルキル、アミノ、 C_{1-6} アルキルアミノ及びジ(C_{1-6} アルキル)アミノから成る群から各々独立して選ばれ；

J, U及びVが水素及びハロゲンから各々独立して選ばれ；

R¹が水素、 C_{1-6} アルキル及び(C_{1-6} アルコキシ)カルボニルから成る群から選ばれ；

R²が水素及び C_{1-6} アルキルから選ばれ；

Wが基- $\overset{\text{O}}{\parallel}\text{C}-\text{G}$ (式中、Gはヒドロキシ、 C_{1-10} アルコキシ、 C_{2-10} アルケニルオキシ、 C_{2-10} アルキニルオキシ、 C_{1-10} アルキルチオ、シクロヘキシルオキシ；アミノ、N-(C_{1-6} アルキル)アミノ、N,N-ジ(C_{1-6} アルキル)アミノ及びN,N,N-トリ(C_{1-6} アルキル)アンモニオから成る群から選

(7)

5. 前記式(I)または(II)において、

Aが水素及びハロゲンから選ばれ；

Bが水素、ハロゲン、 C_{1-6} アルキル及び C_{1-6} ヘロアルキルから成る群から選ばれ；

Dが水素、ハロゲン、 C_{1-6} アルキル、 C_{1-6} ヘロアルキル、アミノ、N,N-ジ(C_{1-6} アルキル)アミノ及びニトロから成る群から選ばれ；

E及びVが水素であり；

J及びUが水素及びハロゲンから各々独立して選ばれ；

R¹が C_{1-6} アルキルから選ばれ；

R²が水素及び C_{1-6} アルキルから選ばれ；

Wが基- $\overset{\text{O}}{\parallel}\text{C}-\text{G}$ (式中、Gはヒドロキシ、 C_{1-10} アルコキシ、 C_{2-10} アルケニルオキシ、 C_{2-10} アルキニルオキシ、 C_{1-10} アルキルチオ、シクロヘキシルオキシ；アミノ、N,N-ジ(C_{1-6} アルキル)アミノ及びN,N,N-トリ(C_{1-6} アルキル)アンモニオから成る群から選ばれた1個の置換基で置換された C_{1-10} アルコキシ基；基-O-N=R⁴ (式中、R⁴は C_{1-10} アルキリデン基である；ならびに、基OM

(9)

ばれた1個の置換基で置換された C_{1-10} アルコキシ基；基-O-N=R⁴ (式中、R⁴は C_{1-10} アルキリデン基である)；ならびに、基OM (式中、Mはアルカリ金属イオンもしくはアルカリ土類金属イオンである)から成る群から選ばれる]であり；

Yが置換及び置換から選ばれ；

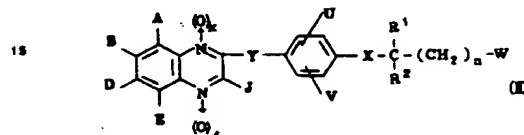
Xが置換であり；

k及びlが0及び1から各々独立して選ばれ且つk+lが0もしくは1であり；そして、

nが0である

特許請求の範囲第1項または第2項記載の化合物。

4. 一般式(II)



で表わされる特許請求の範囲第1項ないし第3項のいずれかに記載の化合物。

(8)

(式中、Mはアルカリ金属イオンである)から成る群から選ばれる]であり；

X及びYは置換であり；

k及びlが0及び1から各々独立して選ばれ且つk+lが0もしくは1であり；そして、

nが0である

特許請求の範囲第1項ないし第4項のいずれかに記載の化合物。

6. 前記一般式(I)または(II)において、

A, B, J, U, V及びR²が水素であり；

B及びDが水素、ハロゲン及びメチルから成る群から各々独立して選ばれ；

R¹がメチルであり；

Wが基- $\overset{\text{O}}{\parallel}\text{C}-\text{G}$ (式中、Gはヒドロキシ、 C_{1-6} アルコキシ、 C_{2-6} アルケニルオキシ、 C_{2-6} アルキニルオキシ、シクロヘキシルオキシ；N,N-ジ(C_{1-6} アルキル)アミノ及びN,N,N-トリ(C_{1-6} アルキル)アンモニオから成る群から選ばれた1個の置換基で置換された C_{1-6} アルコキシ基；ならびに基OM (式中、Mはアルカリ金属イオンである)から

(10)

成る群から選ばれる)であり;

X及びYは塩素であり;

kが0もしくは1であり;そして

l及びmが0である

特許請求の範囲第1項ないし第5項のいずれかに記載の化合物。

7. 前記一般式(II)または(III)において、

A, B, E, J, U, V及びB²が水素であり;

Dが臭素及び塩素から選ばれる;

B¹がメチルであり;

Wが基 $-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{C}}}-\text{G}$ (式中、Gはヒドロキシ、C₁₋₆アルコキシ、アリルオキシ、シクロヘキシルオキシ、2-(N,N-ジ(C₁₋₆アルキル)アミノ)エトキシ、2-(N,N,N-トリ(C₁₋₆アルコキシ)アンモニオ)エトキシ及び基OM (式中、Mはナトリウムもしくはカリウムである)から成る群から選ばれる)であり;

X及びYは塩素であり;

kは0もしくは1であり;そして

l及びmは0である

(11)

キル、C₁₋₆ヘロアルキル、C₂₋₆アルケニル、C₃₋₇シクロアルキル、C₁₋₆アルコキシ、C₁₋₆ヘロアルコキシ、C₁₋₆アルキルチオ、C₁₋₆アルキルスルフィニル、C₁₋₆アルキルスルホニル、C₁₋₆ヘロアルキルスルフィニル、C₁₋₆ヘロアルキルスルホニル、スルホ、C₁₋₆アルコキシスルホニル、スルファモイル、N-(C₁₋₆アルキル)スルファモイル、N,N-ジ(C₁₋₆アルキル)スルファモイル、カルボキシ、(C₁₋₆アルコキシ)カルボニル、カルボモイル、N-(C₁₋₆アルキル)カルボモイル、N,N-ジ(C₁₋₆アルキル)カルボモイル、フェニル、フェノキシ、フェニルチオ、をらびに置換フェニル、置換フェノキシ及び置換フェニルチオ基(各基において、フェニル置換はヘロゲン、C₁₋₆アルキル、C₁₋₆ヘロアルキル、C₁₋₆アルコキシ、ニトロ及びシアノから成る群から選ばれた1乃至3個の置換基で置換される)から成る群から各々独立して選ばれる;且つA, B, D, E及びJのうち1個は水素以外の置換基であり;

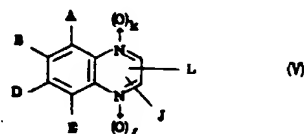
k及びlは0及び1から各々独立して選ばれる;

(13)

特許請求の範囲第1項ないし第6項のいずれかに記載の化合物。

8. 2-[4-(6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ)フェノキシ]プロピオン酸及び2-[4-(6-プロモ-2-キノキサリニルオキシ)フェノキシ]プロピオン酸のメチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、n-ブチル、イソブチル、tert-ブチル及びシクロヘキシルエステルから成る群から選ばれる特許請求の範囲第1項ないし第7項のいずれかに記載の化合物。

9. 一般式(IV)の化合物:



(一般式(IV)において、

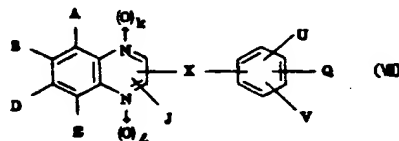
A, B, D, E及びJは、水素、ヘロゲン、ニトロ、シアノ、チオシアノ、アミノ、C₁₋₆アルキルアミノ、ジ(C₁₋₆アルキル)アミノ、C₁₋₆アル

(12)

且つk及びlまたはmは1であり;

Lは塩素、臭素、ヨウ素及びアルキルスルホニルから成る群から選ばれた置換基である)。

10. 一般式(V)の化合物:



(上記式(V)において、

A, B, D, E, J, U及びVは、水素、ヘロゲン、ニトロ、シアノ、チオシアノ、アミノ、C₁₋₆アルキルアミノ、ジ(C₁₋₆アルキル)アミノ、C₁₋₆アルキル、C₁₋₆ヘロアルキル、C₂₋₆アルケニル、C₃₋₇シクロアルキル、C₁₋₆アルコキシ、C₁₋₆ヘロアルコキシ、C₁₋₆アルキルチオ、C₁₋₆アルキルスルフィニル、C₁₋₆アルキルスルホニル、C₁₋₆ヘロアルキルスルフィニル、C₁₋₆ヘロアルキルスルホニル、スルホ、C₁₋₆アルコキシスルホニル、スルファモイル、N-(C₁₋₆アルキル)スルファモイル

(14)

ル、N,N-ジ(C₁₋₆アルキル)スルファモイル、カルボキシ、(C₁₋₆アルコキシ)カルボニル、カルボモイル、N-(C₁₋₆アルキル)カルボモイル、N,N-ジ(C₁₋₆アルキル)カルボモイル、フェニル、フェノキシ、フェニルチオ、ならびに置換フェニル、置換フェノキシ及び置換フェニルチオ基(各基において、フェニル環はハロゲン、C₁₋₆アルキル、C₁₋₆ハロアルキル、C₁₋₆アルコキシ、ニトロ及びシアノから成る群から選ばれた1乃至3個の置換基で置換される)から成る群から各々独立して選ばれ;

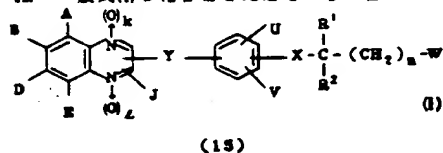
Xは酸素及び硫黄から選ばれ;

k及びLは0及び1から各々独立して選ばれ;

そして

Qはヒドロキシ、メルカプト、C₁₋₆アルコキシ及びC₁₋₆アルキルチオから選ばれる)。

11. 一般式(I)の化合物またはそれらの塩:



個の置換基で置換される)から成る群から各々独立して選ばれ;

R¹が、水素、C₁₋₆アルキル、C₂₋₆アルケニル、C₂₋₆アルコキシアルキル、C₁₋₆ハロアルキル、アセチル、プロピオニル及びC₂₋₆アルコキシカルボニルから成る群から選ばれ;且つR²が水素、C₁₋₆アルキル、C₂₋₆アルケニル、C₂₋₆アルコキシアルキル及びC₁₋₆ハロアルキルから成る群から選ばれるか;または、R¹及びR²が一様になることによってメチレン、エタリデン、プロピリデンもしくはイソプロピリデン基を形成してもよく;

Wは、シアノ、チオカルボモイル、 $-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{C}}}-\text{G}$ 及び $-\text{CH}_2\text{Z}$ (式中、Gは、ヒドロキシ、メルカプト、C₁₋₁₀アルコキシ、C₁₋₁₀ハロアルコキシ、C₂₋₁₀アルケニルオキシ、C₂₋₁₀アルキニルオキシ、C₁₋₁₀アルキルチオ、C₂₋₁₀アルケニルチオ、C₂₋₁₀アルキニルチオ、C₃₋₇シクロアルコキシ、1もしくは2個のC₁₋₆アルキル基で置換されたC₃₋₇シクロアルコキシ、フェノキシ、フェニルチオ、ベンジルオキシ、ベンジルチオ;C₁₋₆アルコキシ、アミノ、

(17)

(上記式(I)において、

A, B, D, E, J, U及びVは、水素、ハロゲン、ニトロ、シアノ、チオシアノ、アミノ、C₁₋₆アルキルアミノ、ジ(C₁₋₆アルキル)アミノ、C₁₋₆アルキル、C₁₋₆ハロアルキル、C₂₋₆アルケニル、C₃₋₇シクロアルキル、C₁₋₆アルコキシ、C₁₋₆ハロアルコキシ、C₁₋₆アルキルチオ、C₁₋₆アルキルスルフィニル、C₁₋₆アルキルスルホニル、C₁₋₆ハロアルキルスルフィニル、C₁₋₆ハロアルキルスルホニル、スルホ、C₁₋₆アルコキシスルホニル、スルファモイル、N-(C₁₋₆アルキル)スルファモイル、N,N-ジ(C₁₋₆アルキル)スルファモイル、カルボキシ、(C₁₋₆アルコキシ)カルボニル、カルボモイル、N-(C₁₋₆アルキル)カルボモイル、N,N-ジ(C₁₋₆アルキル)カルボモイル、フェニル、フェノキシ、フェニルチオ、ならびに置換フェニル、置換フェノキシ及び置換フェニルチオ基(各基において、フェニル環はハロゲン、C₁₋₆アルキル、C₁₋₆ハロアルキル、C₁₋₆アルコキシ、ニトロ及びシアノから成る群から選ばれた1乃至3

(16)

アンモニオ、シアノ、N-(C₁₋₆アルキル)アミノ、N,N-ジ(C₁₋₆アルキル)アミノ及びN,N,N-トリ(C₁₋₆アルキル)アンモニオから成る群から選ばれた1個の置換基で置換されたC₁₋₁₀アルコキシ基;フェノキシ、フェニルチオ、ベンジルオキシ及びベンジルチオ基(各基において、フェニル環はハロゲン、ニトロ、シアノ、C₁₋₆アルキル、C₁₋₆ハロアルキル及びC₁₋₆アルコキシから成る群から選ばれた1乃至3個の置換基で置換される);基OM(式中、Mは無機または有機塩基のカチオンである);基-NHSO₂R³(式中、R³はC₁₋₁₀アルキル及びC₁₋₁₀ハロアルキルから選ばれる);基-NR⁴R⁵(式中、R⁴及びR⁵は水素、C₁₋₆アルキル、フェニル及びベンジルから成る群から各々独立して選ばれるかまたはR⁴及びR⁵が一様になることによって複素環を形成する);ならびに、基-O-N-R⁶(式中、R⁶はC₁₋₁₀アルキリデン基である)から成る群から選ばれ;そして、Zはハロゲン、ヒドロキシ、メルカプト、C₁₋₁₀アルコキシ、C₁₋₁₀ハロアルコキシ、C₁₋₁₀アルキルチオ及び基-NR⁴R⁵(式中、

(18)

R¹及びR²は前記定義した通り)から選ばれる)から成る群から選ばれる;

X及びYは酸素及び硫黄から各々独立して選ばれ;

k及びlは0及び1から各々独立して選ばれ;

そして

nは0, 1もしくは2である)

を活性成分とし且つこれに組体を配合してなる除草剤組成物。

12. 不必要な植物に過激な損傷を与えるか、または該植物を枯らせる方法であって、

特許請求の範囲第1項乃至第8項のいずれかに記載の化合物の有効量または特許請求の範囲第11項に記載の除草剤組成物の有効量を、該植物自体または該植物の生育環境に適用することを特徴とする方法。

13. 双子葉植物の作物に属して生育する单子葉植物の雑草の生長を選択的に制御する方法であって、

特許請求の範囲第1項乃至第8項のいずれかに

(19)

C₃₋₇シクロアルキル、C₁₋₆アルコキシ、C₁₋₆ハロアルコキシ、C₁₋₆アルキルチオ、C₁₋₆アルキルスルフィニル、C₁₋₆アルキルスルホニル、C₁₋₆ハロアルキルスルフィニル、C₁₋₆ハロアルキルスルホニル、スルホ、C₁₋₆アルコキシスルホニル、スルファモイル、N-(C₁₋₆アルキル)スルファモイル、N,N-ジ(C₁₋₆アルキル)スルファモイル、カルボキシ、(C₁₋₆アルコキシ)カルボニル、カルバモイル、N-(C₁₋₆アルキル)カルバモイル、N,N-ジ(C₁₋₆アルキル)カルバモイル、フェニル、フェノキシ、フェニルチオ、ならびに置換フェニル、置換フェノキシ及び置換フェニルチオ基(各基において、フェニル環はハロゲン、C₁₋₆アルキル、C₁₋₆ハロアルキル、C₁₋₆アルコキシ、ニトロ及びシアノから成る群から選ばれた1乃至3個の置換基で置換される)から成る群から各々独立して選ばれ;

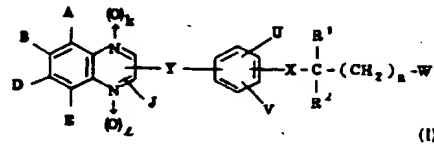
R¹が水素、C₁₋₆アルキル、C₂₋₆アルケニル、C₂₋₆アルコキシアルキル、C₁₋₆ハロアルキル、アセチル、プロピオニル及びC₂₋₆アルコキシカルボニ

(21)

記載の化合物または特許請求の範囲第11項に記載の除草剤組成物を、該雑草に過激な損傷を与えるかまたは該雑草を枯らせるのに充分であるが該作物に実質的に損傷を与えるには不十分である量において、該作物自体または該作物の生育環境に適用することを特徴とする方法。

14. 前記化合物を1ヘクタールについて0.005乃至20kgの割合で適用する特許請求の範囲第12項または第13項記載の方法。

15. 一般式(I)の化合物及びそれらの塩:



(上記式(I)において、

A, B, D, E, J, U及びVは、水素、ハロゲン、ニトロ、シアノ、チオシアノ、アミノ、C₁₋₆アルキルアミノ、ジ(C₁₋₆アルキル)アミノ、C₁₋₆アルキル、C₁₋₆ハロアルキル、C₂₋₆アルケニル、

(20)

ルから成る群から選ばれ; 且つR²が水素、C₁₋₆アルキル、C₂₋₆アルケニル、C₂₋₆アルコキシアルキル及びC₁₋₆ハロアルキルから成る群から選ばれるか; または、R¹及びR²が一連になってメチレン、エチリデン、プロピリデンもしくはイソプロピリデン基を形成してもよく;

Wは、シアノ、チオカルバモイル、 $\begin{smallmatrix} O \\ || \\ -C-G \end{smallmatrix}$ 及び $-CH_2-$ 〔式中、Gは、ヒドロキシ、メルカプト、C₁₋₁₀アルコキシ、C₁₋₁₀ハロアルコキシ、C₂₋₁₀アルケニルオキシ、C₂₋₁₀アルキニルオキシ、C₁₋₁₀アルキルチオ、C₂₋₁₀アルケニルチオ、C₂₋₁₀アルキニルチオ、C₃₋₇シクロアルコキシ、1もしくは2個のC₁₋₆アルキル基で置換されたC₃₋₇シクロアルコキシ、フェノキシ、フェニルチオ、ベンジルオキシ、ベンジルチオ; C₁₋₆アルコキシ、アミノ、アンモニオ、シアノ、N-(C₁₋₆アルキル)アミノ、N,N-ジ(C₁₋₆アルキル)アミノ及びN,N,N-トリ(C₁₋₆アルキル)アンモニオから成る群から選ばれた1個の置換基で置換されたC₁₋₁₀アルコキシ基; フェノキシ、フェニルチオ、ベンジルオ

(22)

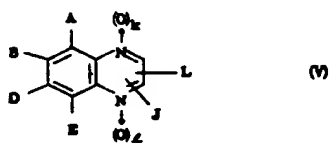
キシ及びベンジルチオ基(各基において、フェニル環は水素、ニトロ、シアノ、 C_{1-6} アルキル、 C_{1-6} ヘロアルキル及び C_{1-6} アルコキシから成る群から選ばれた1乃至3個の置換基で置換される); 基OM(式中、Mは無機または有機塩基のカチオンである); 基 $-NRBO_2R^4$ (式中、 R^4 は C_{1-10} アルキル及び C_{1-10} ヘロアルキルから選ばれる); 基 $-NR^4R^5$ (式中、 R^4 及び R^5 は水素、 C_{1-6} アルキル、フェニル及びベンジルから成る群から各々独立して選ばれるまたは R^4 及び R^5 が一膚になって複素環を形成する); ならびに、基 $-O-NR^4$ (式中、 R^4 は C_{1-10} アルキルチオ基である)から成る群から選ばれ; そして、Zは水素、ヒドロキシ、メルカプト、 C_{1-10} アルコキシ、 C_{1-10} ヘロアルコキシ、 C_{1-10} アルキルチオ及び基 NR^4R^5 (式中、 R^4 及び R^5 は前に定義した通り)から選ばれる]から成る群から選ばれ;

X及びYは酸素及び硫黄から各々独立して選ばれ;

k及びlは0及び1から各々独立して選ばれ;

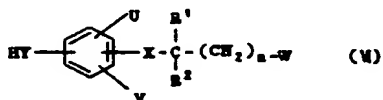
(23)

一般式(V)



[上記式(V)において、A、B、D、E、J、k及びlは前に定義した通りであり; Lは置換基である]

のキノキサリン誘導体を一般式(VI)



[上記式(VI)において、U、V、 R^1 、 R^2 、W、X、Y及びaは前に定義した通りである]

の化合物と反応せしめる

ことを含んでなる一般式(I)の化合物及びそれらの塩の合成方法。

16. 前記一般式(V)のキノキサリン誘導体を一般式(VI)

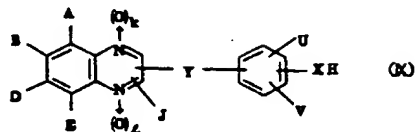
(25)

そして

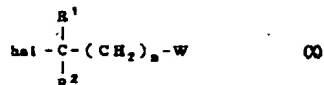
aは0、1もしくは2である]

の合成方法において、

一般式(X)



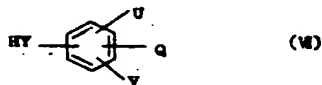
[上記式(X)において、A、B、D、E、J、U、V、X、Y、k及びlは前に定義した通りである]のキノキサリン誘導体を一般式(XI)



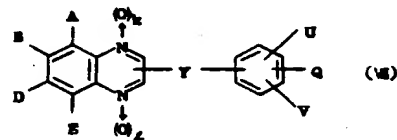
[上記式(XI)において、 R^1 、 R^2 、W及びaは前に定義した通りであり; halは塩素、臭素もしくはヨウ素である]

の化合物と反応せしめるか、あるいは

(24)



[上記式(VII)において、U、V及びYは前に定義した通りであり; Qはヒドロキシ、メルカプト、 C_{1-6} アルコキシもしくは C_{1-6} アルキルチオである]のフェノールもしくはチオフェノールと反応せしめて、一般式(VIII)



[上記式(VIII)において、A、B、D、E、J、U、V、Y、Q、k及びlは前に定義した通りである]の化合物を生成し、そして

Qが C_{1-6} アルコキシもしくは C_{1-6} アルキルチオである場合には前記一般式(VII)の化合物を塩アルキル化することによって、前記一般式(X)のキノキサ

(26)

ナリン化合物を調製する特許請求の範囲第15項記載の合成方法。

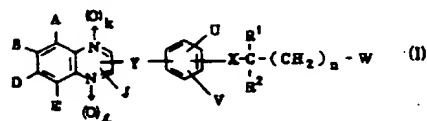
以下余白

3. 発明の詳細な説明、

本発明は、生物活性を有する有機化合物（特に、除草作用を有する有機化合物）、かかる化合物の合成方法、かかる化合物の製造に有用な中間体、かかる化合物を含んでなる除草剤組成物及びかかる化合物の使用方法に関する。

我々は、生物活性、中でも特に除草活性を示す新しい種類のキノキサリン類を見出した。

従って、本発明は、一般式(I)



の化合物またはそれらの塩を提供する。

上記式(I)において、

A, B, D, E, J, U及びVは、水素、ハロゲン、ニトロ、シアノ、チオシアノ、アミノ、C₁₋₆アルキルアミノ、ジ(C₁₋₆アルキル)アミノ、C₁₋₆アルキル、C₁₋₆ヘロアルキル、C₂₋₆アルケニル、C₃₋₇シクロアルキル、C₁₋₆アルコ

(27)

(28)

キシ、C₁₋₆ヘロアルコキシ、C₁₋₆アルキルチオ、C₁₋₆アルキルスルフィニル、C₁₋₆アルキルスルホニル、C₁₋₆ヘロアルキルスルフィニル、C₁₋₆ヘロアルキルスルホニル、スルホ、C₁₋₆アルコキシスルホニル、スルファモイル、N-(C₁₋₆アルキル)スルファモイル、N,N-ジ(C₁₋₆アルキル)スルファモイル、カルボキシ、(C₁₋₆アルコキシ)カルボニル、カルボモイル、N-(C₁₋₆アルキル)カルボモイル、N,N-ジ(C₁₋₆アルキル)カルボモイル、フェニル、フェノキシ、フェニルチオ、ならびに置換フェニル、置換フェノキシ及び置換フェニルチオ基（各基において、フェニル環はハロゲン、C₁₋₆アルキル、C₁₋₆ヘロアルキル、C₁₋₆アルコキシ、ニトロ及びシアノから成る群から選ばれた1乃至3個の置換基で置換される）から成る群から各々独立して選ばれ；

R¹が水素、C₁₋₆アルキル、C₂₋₆アルケニル、C₂₋₆アルコキシアルキル、C₁₋₆ヘロアルキル、アセチル、プロピオニル及びC₂₋₆アルコキシカルボニルから成る群から選ばれ、且つR²が水素、

(29)

C₁₋₆アルキル、C₂₋₆アルケニル、C₂₋₆アルコキシアルキル及びC₁₋₆ヘロアルキルから成る群から選ばれるか；または、R¹及びR²が一緒になってメチレン、エチリデン、プロピリデンもしくはイソプロピリデン基を形成してもよく；

Wは、シアノ、チオカルバモイル、 $-C(=O)-G$ 及び $-CH_2Z$ （式中、Gは、ヒドロキシ、メルカプト、C₁₋₁₀アルコキシ、C₁₋₁₀ヘロアルコキシ、C₂₋₁₀アルケニルオキシ、C₂₋₁₀アルキニルオキシ、C₁₋₁₀アルキルチオ、C₂₋₁₀アルケニルチオ、C₂₋₁₀アルキニルチオ、C₃₋₇シクロアルコキシ、1もしくは2個のC₁₋₆アルキル基で置換されたC₃₋₇シクロアルコキシ、フェノキシ、フェニルチオ、ベンジルオキシ、ベンジルチオ；C₁₋₆アルコキシ、アミノ、アンモニオ、シアノ、N-(C₁₋₆アルキル)アミノ、N,N-ジ(C₁₋₆アルキル)アミノ及びN,N,N-トリ(C₁₋₆アルキル)アンモニオから成る群から選ばれた1個の置換基で置換されたC₁₋₆アルコキシ基；フェノキシ、フェニルチオ、ベンジルオキシ及びベンジルチオ

(30)

基(各基において、フェニル環はハロゲン、ニトロ、シアノ、 C_{1-6} アルキル、 C_{1-6} ヘロアルキル及び C_{1-6} アルコキシから成る群から選ばれた1乃至3個の置換基で置換される);基OM(式中、Mは無機または有機陽基のカチオンである);基 $-NHBO_2R^3$ (式中、 R^3 は C_{1-10} アルキル及び C_{1-6} ヘロアルキルから選ばれる);基 $-NR^4R^5$ (式中、 R^4 及び R^5 は水素、 C_{1-6} アルキル、フェニル及びベンジルから成る群から各々独立して選ばれる)または R^4 及び R^5 が一様になって複素環を形成する);ならびに、基 $-O-NR^6$ (式中、 R^6 は C_{1-10} アルキリアン基である)から成る群から選ばれる;そして、Zはハロゲン、ヒドロキシ、メルカプト、 C_{1-10} アルコキシ、 C_{1-10} ヘロアルコキシ、 C_{1-10} アルキルチオ及び基 $-NR^4R^5$ (式中、 R^4 及び R^5 は前記定義した通り)から選ばれる)から成る群から選ばれる;

X及びYは酸素及び硫黄から各々独立して選ばれる;

K及びLは0及び1から各々独立して選ばれる;

(31)

(C_{1-6} アルコキシ)カルボニルである。

好ましい R^2 は、水素及び C_{1-6} アルキルである。

好ましいWは以下の基である:

a) 基 $-C(=O)-$ (式中、Oはヒドロキシ、 C_{1-10}

アルコキシ、 C_{1-10} ヘロアルコキシ、 C_{2-10} アルケニルオキシ、 C_{2-10} アルキニルオキシ、 C_{1-10} アルキルチオ、 C_{2-10} アルケニルチオ、 C_{2-10} アルキニルチオ、フェノキシ、ベンジロキシ、シクロヘキシルオキシ; C_{1-6} アルコキシ、アミノ、 $N-(C_{1-6}$ アルキル)アミノ、 N,N -ジ(C_{1-6} アルキル)アミノ及び N,N,N -トリ(C_{1-6} アルキル)アンモニオから成る群から選ばれた1個の置換基で置換された C_{1-10} アルコキシ基;基 $-NR^4R^5$ (式中、 R^4 及び R^5 は水素、 C_{1-6} アルキル及びフェニルから各々独立して選ばれる);基OM(式中、Mはアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオンもしくはアンモニウムイオン $HNR^4R^5R^6$ (式中、 R^4 、 R^5 及び R^6 は水素、 C_{1-6} アルキル、

(33)

そして

nは0、1もしくは2である。

R^1 及び R^2 が同一でない一般式(I)の化合物は光字活性である。本発明はまた、かかる化合物の個々の立体異性体、これらの立体異性体の混合物及び立体異性体のラセミ混合物も包含する。

好ましいA、B、D及びEは、水素、ハロゲン、ニトロ、シアノ、アミノ、 C_{1-6} アルキルアミノ、ジ(C_{1-6} アルキル)アミノ、 C_{1-6} アルキル、 C_{1-6} ヘロアルキル、 C_{2-6} アルケニル、 C_{1-6} アルコキシ、 C_{1-6} ヘロアルコキシ、 C_{1-6} アルキルチオ、カルボキシ及び C_{1-6} アルコキシカルボニルである。

好ましいJは、水素、ハロゲン、ニトロ、シアノ、 C_{1-6} アルキル及び C_{1-6} ヘロアルキルである。

好ましいU及びVは、水素、ハロゲン、ニトロ、シアノ、 C_{1-6} アルキル及び C_{1-6} ヘロアルキルである。

好ましい R^1 は、水素、 C_{1-6} アルキル及び

(32)

C_{1-6} ヒドロキシアルキル、フェニル及びベンジルから成る群から各々独立して選ばれる)である);基 $-NHBO_2R^3$ (式中、 R^3 は C_{1-6} アルキルである);ならびに、基 $-O-NR^6$ (式中、 R^6 は C_{1-10} アルキリアン基である)から成る群から選ばれる);ならびに

b) 基 $-CH_2Z$ (式中、Zはハロゲン、ヒドロキシ、メルカプト、 C_{1-10} アルコキシならびに基 $-NR^4R^5$ (式中、 R^4 及び R^5 は水素、 C_{1-6} アルキル及びフェニルから成る群から各々独立して選ばれる)から成る群から選ばれる)。

好ましいXは酸素であり且つ好ましいnは0もしくは2である。

さらに好ましくは、

A、B、D及びEは、水素、ハロゲン、ニトロ、 C_{1-6} アルキル、 C_{1-6} ヘロアルキル、アミノ、 C_{1-6} アルキルアミノ及びジ(C_{1-6} アルキル)アミノから成る群から各々独立して選ばれる;

J、U及びVは水素及びハロゲンから各々独立して選ばれる;

(34)

R¹は水素、C₁-₆アルキル及び(C₁-₆アルコキシ)カルボニルから選ばれ;

R²は水素及びC₁-₆アルキルから選ばれ;

Wは基 $\begin{array}{c} \text{O} \\ \parallel \\ \text{C} - \text{O} \end{array}$ (式中、Oはヒドロキシ、C₁-₁₀アルコキシ、C₂-₁₀アルケニルオキシ、C₂-₁₀アルキニルオキシ、C₁-₁₀アルキルテオ、シクロヘキシルオキシ; アミノ、N-(C₁-₆アルキル)アミノ、N,N-ジ(C₁-₆アルキル)アミノ及びN,N,N-トリ(C₁-₆アルキル)アンモニオから成る群から選ばれた1個の置換基で置換されたC₁-₁₀アルコキシ基; ならびに、基OM (式中、Mはアルカリ金属イオンもしくはアルカリ土類金属イオンである) から成る群から選ばれる) であり;

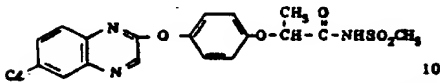
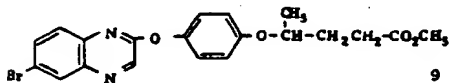
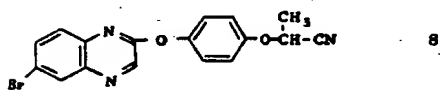
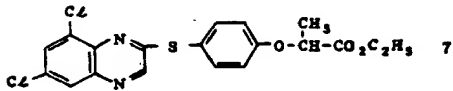
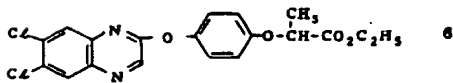
k及びlは0及び1から各々独立して選ばれ且つk+lは0もしくは1であり; そして、

aは0である。

本発明に包含される化合物の例としては下記の化合物を挙げることができる。

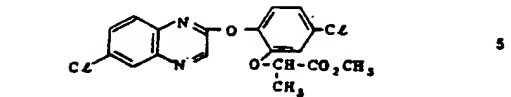
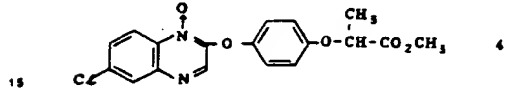
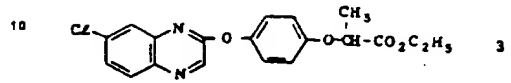
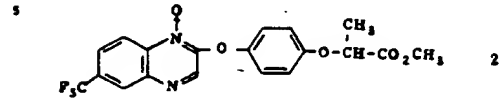
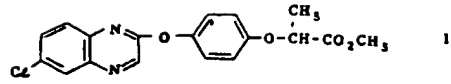
以下余白

(35)



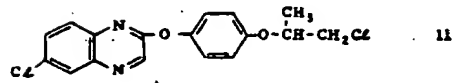
以下余白

(37)

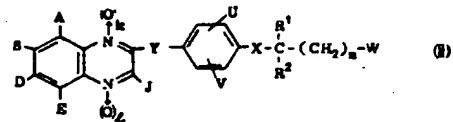


以下余白

(36)



一般式(I)の好ましい化合物は、フェニル環の1位及び4位が置換された2-キノキサリニル化合物、すなわち一般式(II)の化合物である。

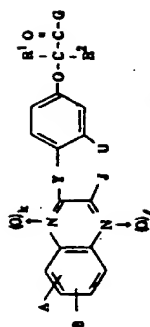


本発明の化合物の具体例を以下の第1a表及び第1b表に挙げる。

以下余白

(38)

表 1. A



化合物 番号	置 換 基						
	A, B, J	k	Y	U	R ¹	R ²	G
1	6-Cl	0	0	0	CH ₃	H	CH ₃ O
4	6-Cl	1	0	0	CH ₃	H	CH ₃ O
12	6,7-Cl ₂	0	0	0	CH ₃	H	CH ₃ O
13	3-Cl	0	0	0	CH ₃	H	CH ₃ O
14	6-Cl	0	0	0	CH ₃	H	C ₂ H ₅ O
15	7-Cl	0	0	0	CH ₃	H	CH ₃ O
16	6-Cl	0	0	0	CH ₃	H	n-C ₄ H ₉ O
17	6-Cl	0	0	0	CH ₃	H	n-C ₄ H ₉ O
18	6-Cl	0	0	0	CH ₃	H	CH ₃
19	3,6,7-Cl ₃	0	0	0	CH ₃	H	CH ₃ O
20	全H	0	0	0	CH ₃	H	C ₂ H ₅ O
21	6-NO ₂	0	0	0	CH ₃	H	C ₂ H ₅ O
22	6-CH ₃	0	0	0	CH ₃	H	C ₂ H ₅ O
23	6,8-Cl ₂	0	0	0	CH ₃	H	C ₂ H ₅ O
24	6,7-(CH ₃) ₂	0	0	0	CH ₃	H	C ₂ H ₅ O
25	6-Br	0	0	0	CH ₃	H	C ₂ H ₅ O
26	6-Cl	0	0	0	CH ₃	H	(CH ₃) ₂ CHCH ₂ O
27	6-Cl	0	0	0	CH ₃	H	CH ₂ -CHCH ₂ O
28	6-Cl	0	0	0	CH ₃	H	CH≡CCH ₂ O
29	6-Cl	0	0	0	CH ₃	H	HO
30	6-Cl	0	0	0	CH ₃	H	N ₃ O ⁺
31	6-Cl	0	0	0	CH ₃	H	C ₂ H ₅ O
32	6-Cl	0	0	0	CH ₃	H	(CH ₃) ₂ C-N-O

以下余白

(39)

表 1. B (続)

化合物 番号	置 換 基						
	A, B, J	k	Y	U	R ¹	R ²	G
33	6-Cl	0	0	0	CH ₃	H	b
34	6-Cl	0	0	0	CH ₃	H	e
35	6-Cl	1	0	0	CH ₃	H	C ₂ H ₅ O
36	7-CF ₃	0	0	0	CH ₃	H	C ₂ H ₅ O
37	6-Cl	0	0	0	CH ₃	H	C ₂ H ₅ O
38	6-F	0	0	0	CH ₃	H	C ₂ H ₅ O
39	6-Cl	0	1	0	CH ₃	H	C ₂ H ₅ O
40	7-CO ₂ C ₂ H ₅	0	0	0	CH ₃	H	C ₂ H ₅ O
41	6-Cl	0	0	0	H	H	C ₂ H ₅ O
42	6-Cl	0	0	0	CH ₃	CH ₃	C ₂ H ₅ O
43	6-Cl	0	0	0	C ₂ H ₅	H	C ₂ H ₅ O
44	6-NH ₂	0	0	0	CH ₃	H	C ₂ H ₅ O
45	6-N(CH ₃) ₂	0	0	0	CH ₃	H	C ₂ H ₅ O
46	6-Cl	0	0	0	CH ₃	H	n-C ₄ H ₉ S
47	6-Cl	0	0	0	CO ₂ C ₂ H ₅	CH ₃	C ₂ H ₅ O

(40)

注: a. 2-メチル-2-プロパノール

b. (CH₃)₂NCH₂CH₂Oc. I⁺(CH₃)₃NCH₂CH₂O

以下余白

第 1b 表

化合物番号	構造
48	
49	

以下余白

本発明の化合物は種々の方法によって製造することができる。別の一面において、本発明は一般式(1)の化合物の製造方法を提供する。

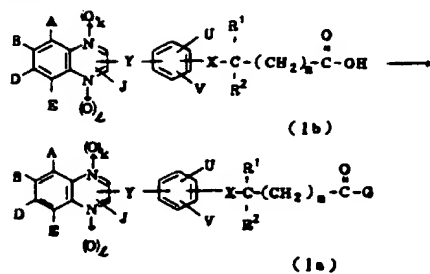
一般式(1a) [(1) : $W-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{C}}}-G$ (式中、Gはヒドロキシルでない)]の化合物は、一般式(1b) [(1) : $W--CO_2H$] の酸から、たとえば、酸を塩基で中和して酸性塩を形成することによって、または酸をアルコール、チオール、フェノールもしくはチオフェノールでエステル化して酸エステルを形成することによって、または酸(またはそれらの酸ハロゲン化物)とアミンとを反応せしめてアミドを形成することによって製造できる(反応式A)。一般式(1b)の本発明の化合物から一般式(1a)の本発明の化合物を製造するためには、酸性塩、酸エステル、酸ハロゲン化物及び酸アミドの公知製造法を、必要以上の実験を行わずに適合させることができる。

以下余白

(41)

(42)

反応式 A

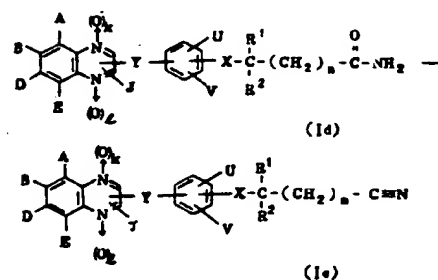


一般式(1a) [(1) : $W--C\equiv N$] の本発明のニトリルは、たとえば、一般式(1d) [(1) : $W--CONH_2$] の酸アミドから誘導できる(反応式B)。

以下余白

(43)

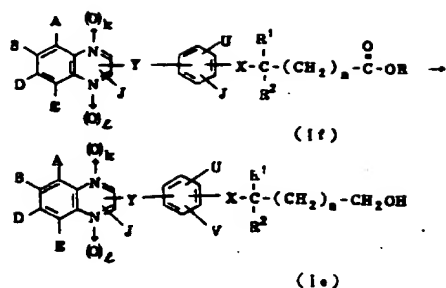
反応式 B



一般式(1e) [(1) : $W--CH_2OH$] の本発明のアルコールは、一般式(1f) [(1) : $W--\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{C}}}-G$ (式中、G=OHもしくはO-アルキル)]の酸または酸エステルから、還元によって製造できる(反応式C)。一般式(1f)の本発明のエステル酸から一般式(1e)の本発明のアルコールを製造するためには、酸もしくは酸エステルをアルコールに還元するための公知の方法(たとえば、水素化リチウムアルミニウム還元)を、必要以上の実験を行わずに適合させることができる。

(44)


反应式 C



一般式(1g)(I)； $W-CH_2-$ ハロゲン〕の本発明のハロゲン化アルキルは、一般式(1e)(I)； $W-CH_2OH$ 〕のアルコールからハロゲン化によって製造できる。一般式(1e)の本発明のアルコールから一般式(1g)の本発明のハロゲン化アルキルを製造するためには、アルコールをハロゲン化アルキルに変化するための公知の方法(たとえば、塩化チオニルのような試薬によるハロゲン化)を、必要以上の乗換を行なわずに適合させることがで

(45)

(たとえば、ウィリアムソンエーテル合成によるアルコール(チオール)との反応)を、必要以上の実験を行なわずに適合させることができる。

一般式(1j) [(II) : W--CH₂NR^aR^b] の本発明のアミンは、一般式(1g) [(II) : W--CH₂--ハロゲン] のハロゲン化アルキルからアミノ化によって、または一般式(1k) [(II) : W--NR^aR^b] のアミドから還元によって製造することができる。一般式(1g) の本発明のハロゲン化アルキルから及び一般式(1k) の本発明のアミドから各々一般式(1j) の本発明のアミンを製造するためには、ハロゲン化アルキルをアミンに置換するための公知の方法(たとえば、アミンとの反応)及びアミドをアミンに置換するための公知の方法(たとえば、水素化リタムアルミニウムのような薬剤による還元)を、必要以上の実験を行わずに適合させることができる。

一般式(I)〔式中、 n 及び m は正の整数である〕
の本発明の N-オキシドは、一般式(I)〔式中、 n
及び m は正の整数である〕の本発明の化合物か

(47)

●●●

一般式(1b)〔(I)；W＝ CH_2OR 〕の本発明のエーテルは、一般式(1a)〔(I)；W＝ CH_2OR 〕のアルコールからアルキル化によって製造できる。一般式(1a)の本発明のアルコールから一般式(1b)の本発明のエーテルを製造するためには、アルコールをエーテルに変換するための公知の方法〔たとえば、ウィリアムソン(Williamson)のエーテル合成法によるハロゲン化アルキルとの反応〕を、必要以上の実験を行わずに適合させることができる。

一般式(1b)〔(11)〕〔(1)〕 $W=CH_2OR(CH_2SR)$ の本発明のエーテル(チオエーテル)は、一般式(1g)〔(1)〕 $W=CH_2-$ ハロゲン〕のハロゲン化アルキルからアルコキシル化(チオアルコキシル化)によって製造することができる。一般式(1g)の本発明のハロゲン化アルキルから一般式(1b)〔(11)〕の本発明のエーテル(チオエーテル)を製造するためには、ハロゲン化アルキルをエーテル(チオエーテル)に変換するための公知の方法

(46)

ら酸化によって製造できる。本発明の N-オキシドを製造するためには、キノキサリンをキノキサリン N-オキシドに変換するための公知の方法（たとえば、過酸塩、過酸化物、過酸または過酸エステルを用いる酸化）を、必要以上の実験を行わずに適合させることができる。

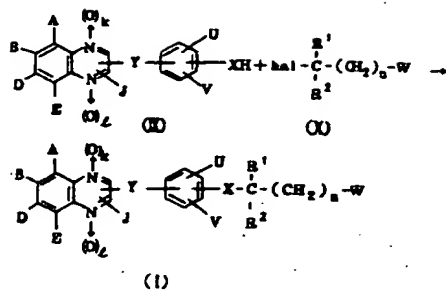
一般式(I)〔式中、A、B、D、E、U、V、Y、X、 B^1 、 B^2 、J、W、k、 \angle 及び \square は前記定義した通り〕の化合物は、一般式(II)のフェノールもしくはチオフェノールと一般式(X)〔式中、halは塩素、臭素もしくはヨウ素である〕の化合物とを、好ましくはアルカリ材料の存在下において融合せしめることによって製造できる(反応式D)。

以下省略

以下未回

(48)

反応式 D



一般式(I)の化合物はまた、以下の方法 a)、b) 及び c) でも製造できる。

a) 一般式(V)〔式中、Lは離脱基(たとえば、アルキルスルホニル、塩素、臭素もしくはヨウ素)である〕の適当なキノキサリン誘導体と一般式(VI)の適当なフェノールまたはチオフェノールとの結合(反応式E)。

以下空白

(49)

もしくはC₁₋₆アルキルチオである〕の化合物の生成；

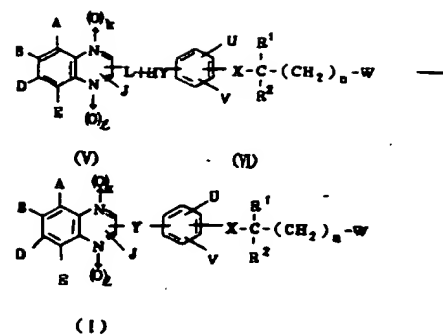
(ii) 前記工程(i)で調製された一般式(VI)〔式中、QはC₁₋₆アルコキシもしくはC₁₋₆アルキルチオである〕の化合物の脱アルキル化による一般式(VI)の化合物の生成；ならびに

(iii) 前記工程(i)もしくは(ii)で得られた一般式(VI)の生成物と一般式(VI)の化合物との結合(前記反応式D)〔工程(i)及び(ii)は反応式Fに示す〕。

以下空白

(51)

反応式 E

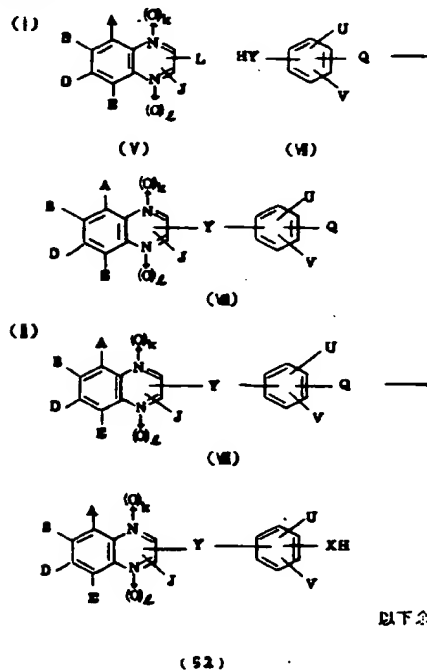


b) 以下の工程の連続：

(i) 一般式(V)〔式中、Lは離脱基(たとえば、アルキルスルホニル、塩素、臭素もしくはヨウ素)である〕の適当なキノキサリン誘導体と一般式(VI)〔式中、Qはヒドロキシ、メルカプト、C₁₋₆アルコキシもしくはC₁₋₆アルキルチオである〕の適当な化合物との結合による一般式(VI)〔式中、Qはヒドロキシ、メルカプト、C₁₋₆アルコキシ

(50)

反応式 F



以下空白

(52)

g) 以下の工程の連続:

(i) 一般式(X)の通称をキノキサリン誘導体と一般式(XI)〔式中、Lは離脱基(たとえば、アルキルスルホニル、塩素、臭素もしくはヨウ素)であり; Qはヒドロキシ、メルカプト、 C_{1-6} アルコキシもしくは C_{1-6} アルキルチオである〕の通称をベンゼン誘導体との結合による一般式(XII)〔式中、Qは前に定義した通り〕の化合物の生成;

(ii) 前記工程(i)で調製された一般式(XII)〔式中、Qは C_{1-6} アルコキシもしくは C_{1-6} アルキルチオである〕の化合物の脱アルキル化による一般式(XIII)の化合物の生成〔前記反応式Fの工程(i)〕; ならびに

(iii) 前記工程(i)もしくは(ii)で得られた一般式(XIII)の生成物と一般式(XIV)の化合物との結合〔前記反応式D〕〔工程(ii)は反応式Gに示す〕。

以下余白

(53)

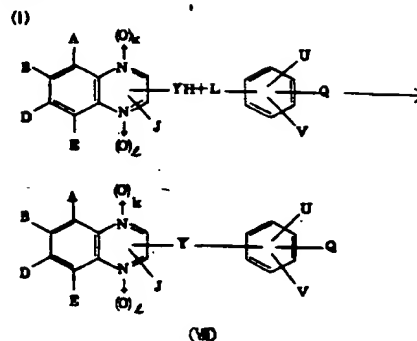
ケトンのようなケトン類ならびにたとえば、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、ジメチルスルホキシド、N-メチルピロリドン、ヘキサメチルホスホアミド及びスルホランのような両性中性溶媒が挙げられる。

反応式D、E、F及びGに示した結合反応を行なうのに必要な反応条件は、使用される反応体及び溶媒の種類に応じて変化する。一般に、反応は加熱によって促進され、通常は40乃至150℃の範囲の反応温度及び0.5乃至20時間の反応時間が申し分ない。しかしながら、所望ならば、これより高いもしくは低い反応温度及び/またはこれより短かいもしくは長い反応時間を用いることもできる。

前述の反応式F及びGに示し且つ前述のb) i) 及びc) i) に記載した脱アルキル化反応は、種々の公知の試薬を用いて行なうことができる。たとえば、アリール-アルキルエーテルは、ピリジン塩酸塩、ヨウ化水素酸、臭化水素酸、ジメチルホルムアミド中のナトリウムチオエトキシド、アセ-

(55)

反応式G



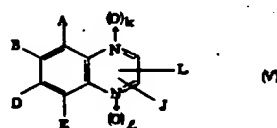
(54)

反応式D乃至Gに示した結合反応は、好ましくはアルカリ材料の存在下且つ好ましくは溶媒の存在下で行なう。適当なアルカリ材料としては、たとえば、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム及び炭酸カリウムのようなアルカリ金属及びアルカリ土類金属の水酸化物及び炭酸塩が挙げられる。適当な溶媒としては、たとえば、アセトン、メチルエタノール及びメチルイソブ

(54)

チルγ-ブチルエンスルホネート、硫酸もしくは酢酸中ヨウ化ナトリウムもしくはヨウ化カリウム、2, 4, 6-トリジン中ヨウ化リチウムならびに三臭化硼素のような試薬を用いて製剤できる。反応時間及び反応条件は、使用される脱アルキル化剤及び製剤すべきエーテルに応じて広く変化する。前記「エーテル-製剤」試薬を用いる時に一般に使用される反応条件は、当業者に知られているものであって、必要以上の実験を行なわずに、前記反応式F及びGに示し且つ前記b) i) 及びc) i) に記載した「エーテル-製剤」反応を行なうために適合させることができる。

一般式(i)の化合物の製造において有用な中間体である一般式(V)



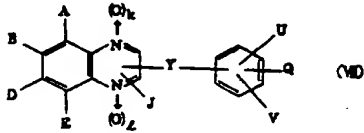
〔式中、A、B、D、E及びJのうち1つは水素

(56)

以外の置換基であり且つ k 及び/または l は1である]

の化合物は、新規な化合物であると考えられる。従って、別の一態様において、本発明は一般式(V)〔式中、A、B、D、E、J、k、l及びjは前に定義した通りであり；A、B、D、E及びJのうち1つは水素以外の置換基であり；k及び/またはlは1である〕の化合物を提供する。

一般式(I)の化合物の製造において有用な中間体である一般式(VI)



の化合物もまた、新規な化合物であると考えられている。従って、別の一態様において、本発明は一般式(VI)〔式中、A、B、D、E、J、k、l、Y、U、V及びQは前に定義した通りである〕の化合物を提供する。

(57)

の化合物もまた、新規な化合物であると考えられている。従って、別の一態様において、本発明は一般式(VI)〔式中、A、B、D、E、J、k、l、Y、U、V及びQは前に定義した通りである〕の化合物を提供する。

一般式(I)の化合物は、植物に直接適用することでもできるし(発芽後の適用)、植物の発芽前に土壌に適用することでもできる(発芽前の適用)。しかしながら、これらの化合物は、一般に、発芽後の植物に適用される場合に、より有効である。

一般式(I)の化合物は、植物の生長を抑制し、植物に過剰な損傷を与え、または植物を枯らせるのに単独でも使用できるが、固体もしくは液体増成剤を含む担体を本発明の化合物に配合して成る組成物の形態で使用するのが好ましい。従って、さらに別の一態様において、本発明は、前記一般式(I)の化合物及びこれに対して不活性な担体を含んでなる、植物の生長を抑制し、植物に損傷を与え、または植物を枯らせる組成物を提供する。

本発明に係る組成物は、そのまますぐに使用で

(58)

一般式(I)の化合物は除草剤としての活性を有する。従って、別の一態様において、本発明は、前記一般式(I)の化合物の有効量を必要な植物自体またはその生育環境に適用することを含んでなる、該植物に過剰な損傷を与えるかまたは該植物を枯らせる方法を提供する。

概して言えば、一般式(I)の化合物は種々の植物に対して除草剤として有効である。しかしながら、本発明の化合物のいくつかは、単子葉植物に対して選択的に活性があり、双子葉植物は、他の種の植物に過剰な損傷を与えるかまたはそれを枯らせるような本発明の化合物の適用量では比較的影響を受けない。

さらに、一般式(I)の化合物のいくつかは、単子葉植物の間で選択的に活性があり、単子葉の植物に混じって生育する単子葉の雑草を枯らせるかまたは該雑草に過剰な損傷を与えるのに充分な量において用いることができる。

従って、さらに別の一態様において、本発明は、作物中の雑草の生長を選択的に抑制する方法であ

(59)

きるような稀釈組成物、及び使用前に(通常は水で)稀釈する必要がある濃厚組成物の両方を含む。これらの組成物は、活性成分を0.01乃至90重量%含むのが好ましい。すぐに使用できる稀釈組成物は活性成分を0.01乃至2重量%含むのが好ましい。一方、濃厚組成物は活性成分を20乃至90重量%含むことができるが、通常は20乃至70重量%含むのが好ましい。

固体組成物は、たとえば、カオリン、メントナイト、珪藻土、プロマイト、炭酸カルシウム、タルク、粉状マгнеシア、フラース及び石膏のような微粉固体増成剤と活性成分とが混合された顆粒剤または散布剤(粉末)の形状であればよい。これらはまた、粉末または粗粒を液体に分散しやすくするための潤滑剤を含む分散性粉末または粗粒の形態であってもよい。粉末の形態の固体組成物は葉への散布剤として適用できる。

液体組成物は、場合によっては界面活性剤を含む活性成分の水溶液または水分散液であってもよいし、あるいは水中に小滴として分散せしめられ

(60)

た、活性成分の水不混和性有機溶媒溶液または分散液であってもよい。

界面活性剤は、陽イオン型、陰イオン型または非イオン型のいずれであってもよい。陽イオン性界面活性剤は、たとえば、第四アンモニウム化合物（たとえば、セチルトリメチルアンモニウムブロミド）である。適当な陰イオン性界面活性剤は、石鹸類；炭素の脂肪族モノエステルの塩類、たとえば、ラウリル硫酸ナトリウム；及び、スルホン化芳香族化合物の塩類、たとえば、ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム、リグノスルホン酸ナトリウム、カルシウム及びアンモニウム、ナフタレンスルホン酸ナトリウム及びジソプロピルナフタレンスルホン酸のナトリウム塩の混合物である。適当な非イオン性界面活性剤は、オレイルアルコール及びセチルアルコールのような脂肪アルコール類とエチレンオキシドとの縮合生成物、またはオクタフルフェノール、ノニルフェノールもしくはオクタフルフェノールのようなアルキルフェノール類とエチレンオキ

(60)

される。通常、これらの農薬物は、長期間の貯蔵に耐え得るものでなければならず、且つそのような貯蔵の間に水で希釈することによって、長時間均一であり且つ常用の噴霧装置で適用し得るような水性剤を形成できるものでなければならぬ。農薬物は、活性成分を20〜90重量％、中でも特に20〜70重量％含むことが好ましい。そのまゝ使用可能な希釈剤は、使用目的に応じて種々の量の活性成分を含むことができる。通常は、0.01乃至10.0重量％、好ましくは0.1乃至2重量％の活性成分が使用される。

好ましい形態の農薬組成物は、微粉化され且つ界面活性剤及び沈殿防止剤の存在下において水中に分散せしめられた活性成分を含んでなる。適当な沈殿防止剤は懸水性コロイドであり、そして、たとえば、ポリビニルピロリドン及びカルボキシメチルセルロースナトリウムならびに、たとえば、アカシア・ゴム及びトラガカントのような植物性ゴムを含む。好ましい沈殿防止剤は、農薬物にチキソトロピー性を与え且つ農薬物の粘度を増加せ

(61)

シドとの縮合生成物である。その他の非イオン性界面活性剤としては、長鎖脂肪酸及びヘキシルアルコールから導かれる部分エステル、たとえば、ソルビタンモノラウレート；エチレンオキシドと部分エステルとの縮合生成物；ならびにレンテン類が挙げられる。

水溶液または水分散液は、湿潤剤もしくは分散助剤を含むかまたは含まない有機溶媒中または水中に活性成分を溶解せしめることによって、そして有機溶媒の使用時には、次いで、湿潤剤もしくは分散助剤を含むかまたは含まない水にこうして得られた混合物を添加することによって調製することができる。適当な有機溶媒としては、たとえば、二塩化エチレン、イソプロピルアルコール、プロピレングリコール、ジアセトンアルコール、トルエン、クロシン、メチルナフタレン、キシレン類及びトリクロロエチレンが挙げられる。

水溶液または水分散液の形態で使用される組成物は、一般に、高濃度の活性成分を含む農薬物の形態で供給され、使用前にこの農薬物が水で希釈

(62)

しめるものである。好ましい沈殿防止剤の例としては、コロイド状水和無機珪酸塩類、たとえば、セントモリロナイト、パイダライト、ジントロナイト、ヘクトライト、サポナイト及びソーコライトが挙げられる。中でも特に、セントナイトが好ましい。その他の沈殿防止剤としては、セルロース誘導体及びポリビニルアルコールが挙げられる。

本発明の化合物の適用量は、たとえば、使用される化合物、生長が抑制されるべき植物、使用される剤形、ならびに化合物の適用部位（葉または根のいずれで採取されるか）を含む多数の因子に応じて変化する。しかしながら、一般的には、適用量は1ヘクタールあたり0.005乃至20kgが適当であって、中でも1ヘクタールあたり0.01乃至5kgが好ましい。

本発明の組成物は、本発明の1もしくはそれ以上の化合物の他に、生物活性を有する本発明以外の化合物を1もしくはそれ以上を含むことができる。たとえば、前述のように本発明の化合物は殺して、双子葉植物もしくは広葉の種（species）

(63)

の植物に対してよりも単子葉植物もしくは草
(grass)の種の植物に対して実質的により有効
である。その結果、本発明の化合物のみを除草剤
として使用したのでは、作物の保護が不十分な場
合がある。従って、さらにまた別の態様において、
本発明は少なくとも1種類の前述の一般式(I)の除
草剤化合物と少なくとも1種類のその他の除草剤
との混合物を含んでなる除草剤組成物を提供する。

その他の除草剤は、一般式(I)を有さない任意の
除草剤であればよく、概して補足的な作用を有す
る除草剤である。たとえば、1つの好ましい種類の
除草剤は、広葉の雑草に対して活性を有する除
草剤を含んでなる混合物である。第2の好ましい
種類の除草剤は、接触性除草剤(contact
herbicide)を含んでなる混合物である。

以下示す

(65)

アミド類等)；

C. 3-[4-(4-ハロフェノキシ)フェニ
ル]-1,1-ジアルキルウレア類、たとえば、
3-[4-(4-クロロフェノキシ)フェニル]
-1,1-ジメチルウレア〔普通名クロロクサス
クロン(chloroxuron)〕；

D. ジニトロフェノール類及びそれらの誘導体
(たとえば、アセテート類)、たとえば、2-メ
チル-4,6-ジニトロフェノール〔普通名
JNOC〕、2-tert-ブチル-4,6-ジニトロ
フェノール〔普通名ジノターブ(dinoterb)〕、
2-sec-ブチル-4,6-ジニトロフェノール
〔普通名ジノセブ(dinoseb)〕及びそのエステ
ル、ジノセブアセテート；

E. ジニトロアニリン除草剤、たとえば、N',
N'-ジエチル-2,6-ジニトロ-4-トリフル
オロメチル-N-フェニルジアニン〔普通名ジ
ニトライン(dinitramine)〕、2,6-ジニト
ロ-N,N-ジプロピル-4-トリフルオロメチ
ルアニリン〔普通名トリフルラリン(trifluralin)〕

(67)

補足的に用いられる有用な除草剤の例としては、
以下のものが挙げられる。

A. ベンゾ-1,1,3-チアジアソル-4-
オン-2,2-ジオキシド類、たとえば、3-イ
ソプロピルベンゾ-2,1,3-チアジアソル-
4-オン-2,2-ジオキシド〔普通名ベンタジ
ン(bentazon)〕；

B. ホルモン除草剤、特に、フェノキシアルカ
ン類、たとえば、4-クロロ-2-メチルフェノ
キシ酢酸〔普通名MCPA〕、2-(2,4-ジクロ
ロフェノキシ)プロピオン酸〔普通名ジクロルプ
ロブ(dichlorprop)〕、2,4,5-トリクロ
ロフェノキシ酢酸〔普通名2,4,5-T〕、4
-(4-クロロ-2-メチルフェノキシ)酢酸
〔普通名MCPB〕、2,4-ジクロロフェノキシ
酢酸〔普通名2,4-D〕、4-(2,4-ジク
ロロフェノキシ)酢酸〔普通名2,4-DB〕、2
-(4-クロロ-2-メチルフェノキシ)プロピ
オン酸〔普通名メコプロブ(mecoprop)〕、及び
それらの誘導体(たとえば、塩類、エステル類、

(66)

及び4-メチルスルホニル-2,6-ジニトロ-
N,N-ジプロピルアニリン〔普通名ニトラリン
(atrazine)〕；

F. フェニルウレア除草剤、たとえば、N'-
(3,4-ジクロロフェニル)-N,N-ジメチ
ルウレア〔普通名ジクロン(dicron)〕及びN,
N-ジメチル-N'-(3-(トリフルオロメチル)
フェニル)ウレア〔普通名フルオメツロン
(fluometuron)〕；

G. フェニルカルバモイルオキシフェニルカル
バメート類、たとえば、3-[(メトキシカルボ
ニル)アミノ]フェニル(3-メチルフェニル)
カルバメート〔普通名フェンメジファン
(phenmedipham)〕及び3-[(エトキシカルボ
ニル)アミノ]フェニルフェニルカルバメート
〔普通名デスメジファン(desmedipham)〕；

H. 2-フェニルピリダジン-3-オン類、た
とえば、5-アミノ-4-クロロ-2-フェニル
ピリダジン-3-オン〔普通名ピラジン
(pyrazon)〕；

(68)

I. クラシル除草剤、たとえば、3-シクロヘキシル-5,6-トリメチレンクラシル〔普通名レナシル (lenasil)〕、5-ブromo-3-see-ブテル-6-メチルクラシル〔普通名ブロマシル (bromasil)〕及び3-tert-ブテル-5-クロロ-6-メチルクラシル〔普通名ターバシル (terbasil)〕；

J. トリアジン除草剤、たとえば、2-クロロ-4-エチルアミノ-6-(1-イソ-プロピルアミノ)-1,3,5-トリアジン〔普通名アトラジン (atrazine)〕、2-クロロ-4,6-ジ(エチルアミノ)-1,3,5-トリアジン〔普通名ジメジン (dimazine)〕及び2-アジド-4-(1-イソ-プロピルアミノ)-6-メチルチオ-1,3,5-トリアジン〔普通名アジプロトリン (asiprotroline)〕；

K. 1-アルコキシ-1-アルキル-3-フェニルウレア除草剤、たとえば、3-(3,4-ジクロロフェニル)-1-メトキシ-1-メチルウレア〔普通名リヌロン (linuron)〕、3-(4-

(69)

クロロフェニル)-1-メトキシ-1-メチルウレア〔普通名モノリヌロン (monolinuron)〕及び3-(4-ブromo-4-クロロフェニル)-1-メトキシ-1-メチルウレア〔普通名クロロブロムロン (chlorobromuron)〕；

L. テオールカルバメート除草剤、たとえば、3-プロピルジプロピル-テオールカルバメート〔普通名ペロレート (verolate)〕；

M. 1,2,4-トリアジン-5-オン除草剤、たとえば、4-アミノ-4,5-ジヒドロ-3-メチル-6-フェニル-1,2,4-トリアジン-5-オン〔普通名メタミトロン (metamitron)〕及び4-アミノ-6-tert-ブテル-4,5-ジヒドロ-3-メチルチオ-1,3,4-トリアジン-5-オン〔普通名メトリブジン (metribuzin)〕；

N. 安息香酸除草剤、たとえば、2,3,6-トリクロロ安息香酸〔普通名2,3,6-TBA〕、3,6-ジクロロ-2-メトキシ安息香酸〔普通名ジカンベ (dicamba)〕及び3-アミノ-2,5-ジクロロ安息香酸〔普通名クロランベン

(70)

(chloramben)〕；

O. アニリド除草剤、たとえば、N-ブトキシメチル-α-クロロ-2',6'-ジエチルアセトアニリド〔普通名ブタクロル (butachlor)〕、その対応するN-メトキシ化合物〔普通名アラクロル (alachlor)〕、その対応するN-イソ-プロピル化合物〔普通名プロパクロル (propachlor)〕及び3',4'-ジクロロプロピオンアニリド〔普通名プロパニル (propenil)〕；

P. ジハロベンゾニトリル除草剤、たとえば、2,6-ジクロロベンゾニトリル〔普通名ジクロベニル (dichlobenil)〕、3,5-ジブromo-4-ヒドロキシベンゾニトリル〔普通名ブromoキシニル (bromoxynil)〕及び3,5-ジブromo-4-ヒドロキシベンゾニトリル〔普通名ロキシニル (loxyail)〕；

Q. ハロアルカン酸除草剤、たとえば、2,2-ジクロロプロピオン酸〔普通名グライン (delepon)〕、トリクロロ酢酸〔普通名TCA〕及びそれらの塩；

(71)

R. ジフェニルエーテル除草剤、たとえば、4-ニトロフェニル-2-ニトロ-4-トリフルオロメチルフェニルエーテル〔普通名フルオロジフェン (fluorodifen)〕、メチル5-(2,4-ジクロロフェノキシ)-2-ニトロベンゾエート〔普通名ビフェノックス (bifenox)〕、2-ニトロ-5-(2-クロロ-4-トリフルオロメチルフェノキシ)安息香酸、2-クロロ-4-トリフルオロメチルフェニル3-エトキシ-4-ニトロ-フェニルエーテル及びEPC出願公告公報第3,416号に開示された化合物；ならびに

S. N,N-ジメチルジフェニルアセトアミド〔普通名ジフェンアミド (difenamid)〕、N-(1-ナフチル)フタルアミド酸〔普通名ナフタリン (naphthalam)〕及び3-アミノ-1,2,4-トリアゾールを含む種々の除草剤。

有効な環状性除草剤の例としては以下のものが挙げられる。

T. ビピリジリウム除草剤、たとえば、活性の実質が1,1'-ジメチル-4,4'-ジピリジリウ

(72)

ムイオンであるもの〔普通名パラquat (para-quat)〕及び活性の異なる1, 1'-エチレン-2, 2'-ジピリジリウムイオンであるもの〔普通名ジquat (diquat)〕；

U. 有機燐系除草剤、たとえば、メチンアルソン酸ナトリウム〔普通名MSMA〕；ならびにV.アミノ酸系除草剤、たとえば、N-(ホスホノメチル)グリシン〔普通名グリホセート (glyphosate)〕ならびにその塩類及びそのエステル類。

本発明を以下の実施例について説明するが、これらは本発明を何ら限定するものではない。

以下余白

(73)

指定された構造が、プロトン磁気共鳴スペクトル分析法及び質量スペクトル分析法によって確認された。

実施例2

メチル2-[4-(6-クロロ-1-オキシド-キノキサリン-2-イルオキシ)フェノキシ]プロピオネート(4)

a) 10℃において攪拌された2,6-ジクロロキノキサリン(3.0g)と過硫酸(2.5g)との混合物に過硫酸カリウム(7.42g)を徐々に加えた。添加完了後、混合物を室温まで暖め、さらに24時間攪拌を続けた。反応混合物を氷水(400ml)中に注ぎ、炭酸水素ナトリウム水溶液で中和し、そしてジクロロメタンで抽出した。有機抽出物をブラインで洗浄し、乾燥し(無水炭酸ナトリウム上で)、そしてろ紙をろ筒によって除去した。残留物をエタノールから結晶化して、2,6-ジクロロキノキサリン-1-オキシドを茶色針状結晶として得た。

融点：185℃

b) 2,6-ジクロロキノキサリン-1-オキシド(1.0g、4.7ミリモル)、メチル2-(4-

(75)

実施例1

メチル2-[4-(6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ)フェノキシ]プロピオネート(1)

2,6-ジクロロキノキサリン(10ミリモル)〔A. F. クロウザー (Crowther) らの方法 (J. Chem. Soc., 1949, 1260) に従って4-クロロ-1,2-ジニトロベンゼン及びアミノ酢酸エチルから調製〕、メチル2-(4-ヒドロキシフェノキシ)プロピオネート(10ミリモル)、無水炭酸ナトリウム(11ミリモル)及びジメチルホルムアミド(40ml)の混合物を3時間還流させながら加熱した。反応混合物を冷却し、水中に注ぎ、そして水性混合物をジエチルエーテルで抽出した。エーテル抽出物を無水炭酸ナトリウム上で乾燥し、減圧ろ過によって除去して固体残留物を得た。この残留物をメタノールから結晶化して、メチル2-[4-(6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ)フェノキシ]プロピオネート(2.5g、70%)を白色針状結晶として得た。

融点：126℃

(74)

ヒドロキシフェノキシ)プロピオネート(0.92g、4.7ミリモル)、無水炭酸カリウム(0.65g、4.7ミリモル)及びメチルエチルケトン(70ml)の混合物を30時間還流させながら加熱した。ろ紙を減圧ろ過によって除去し、残留物をジクロロメタンと水との間で分配した。有機層を分離し、乾燥し、そしてろ紙をろ筒によって暗色の油を得た。残留物をシリカゲル(40g)上でクロマトグラフ処理(溶媒系：ジクロロメタン)して、メチル2-[4-(6-クロロ-1-オキシド-キノキサリン-2-イルオキシ)フェノキシ]プロピオネート(0.75g、43%)を茶褐色固体として得た。

融点：110℃

指定された構造が、プロトン磁気共鳴スペクトル分析法及び質量スペクトル分析法によって確認された。

実施例3

第1表に記載の化合物番号 12乃至15、18
以下余白

(76)

乃至25、35乃至36、40乃至43、48及び49の化合物は、適当なキノキサリン及び適当なアルカン(ヒドロキシフェノキシ)アルカンカルボキシレートから、実施例1または2と實質的に同様な方法に従って調製した。化合物番号47(第1表参照)の化合物は、2,6-ジクロロキノキサリンとジエチル2-(4-ヒドロキシフェノキシ)-2-メチルマロネートとを、実施例1と實質的に同様な方法に従って反応せしめることによって調製した。

各化合物に対して指定された構造が、プロトン磁気共鳴スペクトル分析法及び質量スペクトル分析法によって確認された。

実施例4

2-[4-(6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ)フェノキシ]プロピオン酸(29)

2,6-ジクロロキノキサリン(10ミリモル)、2-(4-ヒドロキシフェノキシ)プロピオン酸(10ミリモル)、無水炭酸カリウム(20ミリモル)及び無水ジメチルホルムアミド(50cc)

(77)

(16)

a) 2-[4-(6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ)フェノキシ]プロピオン酸(20g; 実施例4)と塩化チオニル(15cc)との混合物を1時間還流させながら加熱した。過剰量の塩化チオニルを留去することによって、2-[4-(6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ)フェノキシ]プロピオニルクロリドを得た。

b) 前記a)で調製された2-[4-(6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ)フェノキシ]プロピオニルクロリド、n-プロパノール(10cc)及びトリエチルアミン(2cc)の混合物を室温で30分間攪拌した。この混合物を水(100cc)中に投入し、この水性混合物をジエチルエーテルで抽出した。エーテル抽出物を無水炭酸ナトリウム上で乾燥し、溶液を減圧蒸留によって除去して、n-プロピル2-[4-(6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ)フェノキシ]プロピオネートを白色結晶として得た。

融点: 80℃

(79)

の混合物を3時間還流させながら加熱した。反応物を冷却し、水中に投入した。この水性混合物を15% HCl水溶液で酸性化することによって得られた沈殿物をろ過によって回収した。乾燥生成物をトルエンから再結晶して、2-[4-(6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ)フェノキシ]プロピオン酸を白色結晶として得た。

融点: 130℃(分解)。

指定された構造が、プロトン磁気共鳴スペクトル分析法及び質量スペクトル分析法によって確認された。

実施例5

2-[4-(6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ)フェノキシ]プロピオン酸ナトリウム(30)

対応する酸(実施例4)を水酸化ナトリウム水溶液で中和し、溶液を減圧下において除去することによって、目的化合物を調製した。

実施例6

n-プロピル2-[4-(6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ)フェノキシ]プロピオネート

(78)

指定された構造が、プロトン磁気共鳴スペクトル分析法及び質量スペクトル分析法によって確認された。

実施例7

第1表に記載の化合物番号17、26乃至28、33及び46の化合物を、2-[4-(6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ)フェノキシ]プロピオニルクロリド(実施例6)参照]及び適当なアルコールまたはチオールから、実施例6b)と實質的に同様な方法に従って調製した。化合物番号32(第1表参照)の化合物を、2-[4-(6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ)フェノキシ]プロピオニルクロリド及びアセトンオキシムから同様にして調製した。

各化合物に対して指定された構造をプロトン磁気共鳴スペクトル分析法及び質量スペクトル分析法によって確認した。適当な物理データを実施例14の第2表に記載した。

実施例8

2-(N,N,N-トリメチルアンモニオ)エチル2

(80)

-[4-(6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ)フェノキシ]プロピオネートエーテル(34)

2-(N,N-ジメチルアミノ)エテル2-[4-(6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ)フェノキシ]プロピオネート(33、実施例7参照)とヨウ化メチルとを反応せしめることによって目的化合物を調製した。この塩の融点は68℃であった。

実施例9

エテル2-[4-(6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ)フェノキシ]プロピオネート(31)

a) 4-メルカプトフェノール(10ミリモルのエタノール(10ml)中溶液を1度にナトリウムエトキシド(10ミリモルのエタノール(30ml)中溶液に加えた。混合物を室温で15分間攪拌後、2,6-ジクロロキノキサリン(10ミリモル)を加え、混合物をさらに30分間攪拌した。反応混合物を水(500ml)で希釈し、沈殿物を濾過によって回収し、乾燥して、4-(6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ)フェノールを

(81)

(100ml)との混合物中に、40分間にわたって、 α -クロロ安息香酸(90%活性成分1.032g)を添加した。添加完了後、混合物を室温まで暖め、さらに4日間攪拌を続けた。この懸濁液にジクロロメタンを加え、この混合物を5%炭酸水素ナトリウム水溶液(3×500ml)で洗浄した。ジクロロメタン溶液を乾燥し(無水硫酸ナトリウム上で)、そして溶媒を蒸発せしめた。残留物をメタノールから再結晶して、2,6-ジクロロキノキサリン-4-オキシド(6.1g、57%)を薄黄色針状結晶として得た。

融点: 176℃

b) 2,6-ジクロロキノキサリン-4-オキシドを、実施例2b)と實質的に同様な方法に従って、エテル2-(4-ヒドロキシフェノキシ)プロピオネートと反応せしめて、エテル2-[4-(6-クロロ-4-オキシド-キノキサリン-2-イルオキシ)フェノキシ]プロピオネートを得た。

融点: 105℃

(83)

得た。

融点: 204℃

b) 前記a)で調製したチオエーテル(1.0g)、エテル2-プロモプロピオネート(0.5g)、炭酸カリウム(0.5g)及びメチルエチルケトン(30ml)の混合物を8時間還流させながら加熱した。冷却後、混合物を濾過し、溶媒を減圧蒸留によって除去して、エテル2-[4-(6-クロロ-2-キノキサリニルチオ)フェノキシ]プロピオネートを得た。

融点: 110~115℃

指定された構造が、プロトン磁気共鳴スペクトル分析法及び質量スペクトル分析法によって確認された。

実施例10

エテル2-[4-(6-クロロ-4-オキシド-キノキサリン-2-イルオキシ)フェノキシ]プロピオネート(39)

a) 水溶液において攪拌された2,6-ジクロロキノキサリン(9.85g)とジクロロメタン

(82)

指定された構造が、プロトン磁気共鳴スペクトル分析法及び質量スペクトル分析法によって確認された。

実施例11

エテル2-[4-(6-アミノ-2-キノキサリニルオキシ)フェノキシ]プロピオネート(44)

エテル2-[4-(6-ニトロ-2-キノキサリニルオキシ)フェノキシ]プロピオネート(20g、実施例3に記載の方法に従って調製)を酢酸エテル(600ml)中に溶解せしめ、室温及び大気圧下においてパラジウム担持木炭触媒を用いて水素添加した。水素の取込みが完了した後、溶液を「セライト(Celite)」濾過土のベッドを通して濾過し、減圧蒸留することによって溶媒を濾液から除去した。残留物をアルミナ上でクロマトグラフ処理(溶媒: ジクロロメタン)し、溶媒を蒸発せしめた後、エテル2-[4-(6-アミノ-2-キノキサリニルオキシ)フェノキシ]プロピオネートを黄色結晶として得た。

融点: 134℃

(84)

指定された構造が、プロトン磁気共鳴スペクトル分析法及び質量スペクトル分析法によって確認された。

実施例 1.2

エチル 2-〔4-〔6-(ジメチルアミノ)-2-キノキサリニルオキシ〕フェノキシ〕プロピオネート(45)

エチル 2-〔4-〔6-アミノ-2-キノキサリニルオキシ〕フェノキシ〕プロピオネート(10ミリモル)、ヨウ化メチル(25ミリモル)、アセトン(50cc)及び炭酸カリウム(25ミリモル)の混合物を24時間還流させながら加熱した。反応混合物を濾過して、溶媒を蒸発せしめた。残留物をアルミナ上でクロマトグラフ処理(溶離剤:ジクロロメタン)して、エチル 2-〔4-〔6-(ジメチルアミノ)-2-キノキサリニルオキシ〕フェノキシ〕プロピオネートを黄色油として得た。

指定された構造が、プロトン磁気共鳴スペクトル分析法及び質量スペクトル分析法で確認された。

(85)

実施例 1.3

4-〔6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ〕フェノールからのアルキル 2-〔4-〔6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ〕フェノキシ〕プロピオネートの調製

a) 2,6-ジクロロキノキサリン(25ミリモル)、ヒドロキノノン(25ミリモル)、水酸化カルシウム(25ミリモル)及びジメチルホルムアミド(50cc)の混合物を1時間還流させながら加熱した。混合物を冷却し、水(500cc)中に投入し、そして得られた沈殿物を濾過によって回収し、乾燥した。乾燥生成物をシリカゲル上でクロマトグラフ処理(溶離剤:ジクロロメタン/アセトン(9:1 v/v))し、溶媒を蒸発せしめた後、4-〔6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ〕フェノールを得た。

融点: 20.6℃

b) 化合物番号1、14、16、17及び26を、4-〔6-クロロ-2-キノキサリニルオキシ〕フェノール、メチルエチルケトン及び無水炭

(86)

酸カリウムとメチル 2-プロモプロピオネート、エチル 2-プロモプロピオネート、n-プロピル 2-プロモプロピオネート、n-ブチル 2-プロモプロピオネート及び2-メチルプロピル 2-プロモプロピオネートのうち対応する化合物との混合物を還流させながら加熱することによって調製した。各生成物に対して指定された構造が、プロトン磁気共鳴スペクトル分析法及び質量スペクトル分析法によって確認された。各化合物の物理的性質は実施例1、3、6、7及び7に記載の方法に従って調製された化合物の物理的性質と各々一致した。

実施例 1.4

第1表に挙げた本発明の化合物の多くは固体であり、融点によって同定できる。以下の第2表に融点を記載した。

第1表に挙げた化合物のいくつかは油であり、¹H-NMRスペクトルを特徴とするので、その¹H-NMRスペクトルで同定できる。以下の第3表に¹H-NMRスペクトル分析データを記載する。

(87)

第 2 表

化合物番号	融点 (℃)	化合物番号	融点 (℃)
1	126	28	99
4	110	29	130(分解)
12	109	31	110-115
13	108	32	122
14	92-93	34	68(分解)
15	95	35	121
16	80	36	93
17	79-80	37	109
19	140	38	74
20	70	39	105
21	105	40	81
22	89	41	128
23	74	42	70
24	96	43	68
25	78	44	134
27	82-83	49	88

以下空白

(88)

第2表

化合物	プロトン化学シフト δ ppm (CDCl ₃)			
番号	ア リール基	R ¹	R ²	G
18	86.0.1H;80.0.1H; 76.0.2H;71.0.4H	G参照	47.0.2H G参照	15.0.13H
26	88.0.1H;82.0.1H; 77.0.2H;71.0.4H	17.4.3H	49.0.1H	40.4.2H; 18.0.1H; 10.4.6H
33	87.0.1H;81.0.1H; 77.0.2H;71.0.4H	17.4.3H	49.0.1H	43.0.2H; 27.0.2H; 23.0.6H
45	87.0.1H;69-77.0. 7H (6-(CH ₃) ₂ N 3.0.0.6H)	19.4.3H	48.0.1H	42.0.2H; 12.0.1.3H
46	87.0.1H;70-80.0. 7H	G参照	48.0.1H	29.0.1 2H;1.0- 18.0.10H
47	87.0.1H;80.0.1H; 76.0.2H;72.0.4H	G参照	18.0.3H	44.0.4H; 13.0.6H
48	88.0.1H;70-81. 0.7H	19.4.3H	47.0.1H	41.0.2H; 11.0.1.3H

(89)

ことによって調製した。然る後、乳化性農薬及び懸濁液を水で希釈することによって、本発明の化合物の発芽前及び発芽後の除草剤活性を評価するのに適当な、所望の濃度の水性組成物を生成した。

実施例16

実施例15に記載のようにして調製された本発明の化合物の発芽前の除草剤活性を以下の手法によって評価した。

試験する種の植物の種子を、種子箱中の2cmの深さの土中に列をなすようにして播種した。単子葉植物及び双子葉植物は別々の箱中に播種し、播種後に2つの箱に本発明の組成物の必要量を噴霧した。同様に2つの二重反復種子箱を調製した。しかしこれらは、本発明の組成物を噴霧せず、比較のために用いた。箱はすべて温室中に置き、上から噴霧によって少量の水をまいて種子を発芽せしめ、次いで植物の最適な生長に必要とされる地下かんがいをした。3週間後に、温室から箱を取り出し、そして処置効果を目視評価した。

(91)

実施例15

本発明の化合物の農薬剤は、

a) 油及び蠟状固体の場合には75%の「トリック(Torric)」N13[「Torric」は登録商標であり;「Torric」N13は、ノニルフェノールのエトキシ化生成物であって、アイシーアイ オーストラリア リミテッド(ICI Australia Limited)から入手できる]及び35%の「ケマット(Kemmat)」SC15B[「Kemmat」は登録商標であり;「Kemmat」SC15Bはpアシルベンゼンスルホン酸カルシウムの結晶である)を含むトルエン中に本発明の化合物を溶解することによって;あるいは

b) 結晶性固体の場合には、0.25%の「トリック」N8(ノニルフェノールのエトキシ化生成物)を含む水溶液94重量部に、本発明の化合物5重量部及び「ダイアポール(Dyapol)」PT[「Dyapol」PTは登録商標であり;「Dyapol」PTは陰イオン性洗剤防止剤である]1重量部を加え、そしてこの混合物をゲルミル濃液して安定な懸濁液を生成する

(90)

その結果を表3表に示す。表中において、植物に対する損傷を0乃至3の尺度で評価した。0は0乃至25%の損傷を表わし、3は75乃至99%枯れたことを表わし、そして3+は100%枯れたことを示す。ダッシュ(-)は実験を行なわなかったことを意味する。

試験植物の名前は以下のとおりである。

Wk 小麦
Oa 野生からす麦
Bg 雑草
Ja きび(Japanese millet)
P えんどう
Ip イガイア(Ipomea)
Ma からし
St ひまわり

以下略

(92)

第 3 図
除草剤の除草効果試験

化合物番号	適用量 (g/ha)	Wh	Ol	Bg	Jm	P	Ip	Mo	St
1	5	2	2	3+	3+	0	0	0	0
1	1	2	2	3+	3+	0	0	0	0
1	0.5	0	2	3	3+	0	0	0	0
4	5	2	2	3+	3+	0	0	0	0
4	1	0	0	0	0	0	0	0	0
12	5	1	1	3+	3+	0	0	0	0
12	1	0	0	2	3	0	0	0	0
14	0.5	0	1	2	3+	0	0	0	0
16	0.25	0	0	0	1	0	0	0	0
17	0.25	0	0	0	0	0	0	0	0
18	0.5	0	1	0	1	0	0	0	0
22	5	3	0	3+	3+	0	0	0	0
22	1	0	0	3	2	0	0	0	0
25	5	3	3+	3+	3+	0	0	0	0
25	1	2	3	2	3+	0	0	0	0
25	0.25	0	0	0	3	0	0	0	0
27	5	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
27	1	2	2	3	3+	0	0	0	0
31	5	1	2	3	3	0	0	0	0
31	1	0	0	0	0	0	0	0	0
32	1	0	0	0	0	0	0	0	0
33	1	2	1	3	3+	0	0	0	0
33	0.5	0	0	2	3	0	0	0	0
34	1	1	0	1	3	0	0	0	0
35	5	2	0	3	3+	0	0	0	0
35	1	0	0	0	2	0	0	0	0
35	0.25	0	0	0	0	0	0	0	0

(93)

実施例 17

実施例 15 に記載のようにして調製された本発明の化合物の発芽後の除草剤活性を以下の手法によって評価した。

試験する種の植物の種子を、種子箱中 2 cm の深さの土中に列をなすようにして播種した。単子葉植物と双子葉植物とを別々の種子箱に二重反復で播種した。4 つの種子箱を温室内に置き、上から噴霧によって少量の水をまくことによって発芽せしめ、次いで植物の最適な生長に必要とされる地下かんがいをした。植物が約 10 乃至 12.5 cm の高さまで生長した後、単子葉植物及び双子葉植物の各々 1 箱を温室から取り出し、これに本発明の組成物の必要量を噴霧した。噴霧後、箱を温室にもどしてさらに 3 週間置き、そして未処置の対照群と比較しながら、処置効果を目標評価した。その結果を第 4 表に示す。表中において、植物に対する損傷を 0 乃至 3 の尺度で評価した。0 は 0 乃至 2.5 % の損傷を表わし、3 は 7.5 乃至 9.9 % 損傷を表わし、そして 3+ は 10.0 % 枯れた

ことを表わす。ダッシュ(-)は試験を行なわなかったことを意味する。

試験植物の名前は以下のとおりである。

Wh	小 麦
Ol	野生からす麦
Bg	ヒ ン 麦
Jm	きび (Japanese millet)
P	えんどう
Ip	イボミア (Ipomea)
Mo	か ら し
St	ひまわり

以下空白

(94)

(95)

第 4 表
発芽後の除草剤活性

化合物 番 号	適用量 (kg/ha)	試 験 植 物							
		Wh	Ol	Rg	Jm	P	Ip	Ms	Sf
1	5	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
1	1	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
1	0.5	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
1	0.25	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
1	0.1	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
4	5	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
4	1	3+	3+	3	3+	0	0	0	0
12	5	1	2	3+	3+	0	0	0	0
12	1	0	1	2	2	0	0	0	0
14	0.5	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
14	0.1	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
16	0.25	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
16	0.1	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
17	0.25	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
18	0.5	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0

以下空白

(96)

第 4 表 続

化合物 番 号	適用量 (kg/ha)	試 験 植 物							
		Wh	Ol	Rg	Jm	P	Ip	Ms	Sf
22	5	2	0	3+	3+	0	0	0	0
22	1	2	0	3	3+	0	0	0	0
25	5	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
25	1	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
25	0.25	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
25	0.1	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
27	5	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
27	1	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
31	5	3	3	3+	3+	0	0	0	0
31	1	3	2	3	3+	0	0	0	0
32	1	3	-	3	3+	0	0	0	0
33	1	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
33	0.5	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
34	1	3	3	3+	3+	0	0	0	0
35	5	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
35	1	3+	3+	3+	3+	0	0	0	0
35	0.25	3+	-	3+	3+	0	0	0	0

以下空白

(97)

実施例 18

メタルクローヘキサン中にて「スパン(Span)」
80 を 2.18 g/ℓ 及び「トウィーン(Tween)」
20 を 7.82 g/ℓ 含む溶液 160 ml を水で希釈
して 500 ml とすることによって調製した乳濁液
5 ml と適当量の本発明の化合物とを混合すること
によって、本発明の化合物を試験のために調剤化
した。「スパン」80 はソルビタンモノラウレート
を含む界面活性剤の登録商標である。「トウィー
ン」20 はソルビタンモノラウレートと 20 モル
比のエチレンオキサイドとの混合物を含む界面活性
剤の登録商標である。次いで、試験化合物を含む
各 5 ml の乳濁液を水で 40 ml に希釈し、これを以
下の第 5 表に名前を挙げた種のはち植物の苗に噴
霧した(後発芽試験)。14 日後に、試験植物に
対する損傷を 0 乃至 5 の尺度で評価した。0 乃至
20% 枯れたことを示し、5 は 100% 枯れたこ
とを示す。除草剤活性の前発芽試験においては、
試験する種の植物の種子を縦断面内の土表面に形
成された浅いスリット中に播種した。然る後に、

(98)

この土表面をならし、調剤を噴霧し、次いで噴霧
面に新しい土を厚くまき散らした。21 日後に
除草剤による損傷を、後発芽試験と同様 0 乃至
5 の尺度で評価した。両方の試験において、除草
剤による損傷度は未処置の対照植物との比較によ
って評価した。得られた結果を以下の第 5 表に示
す。ダッシュ(-)は試験を行なわなかったことを意
味する。

試験植物の名前は以下のとおりである。

Sh	てんさい
Bp	西洋あぶらな
Cl	稲
Sr	大豆
Ms	とうもろこし
Wh	秋まき小麦
Ra	稲
Sa	ノギロヤタ (<i>Senecio vulgaris</i>)
Ip	マルバアサガオ (<i>Ipomoea purpurea</i>)
Am	アマランサス・レトロフレキサス (<i>Amaranthus retroflexus</i>)

(99)

Pl	ニワヤナヤ (<i>Polygonum aviculare</i>)	
Ca	アカザ (<i>Chenopodium album</i>)	
Pe	ボーフラカ・オレランア (<i>Portulaca oleracea</i>)	
Xa	ヤサンテウム・ペンシルベニカム (<i>Xanthium pennsylvanicum</i>)	5
Ab	アビュテロン・セオフラスタ (<i>Abutilon theophrasti</i>)	
Cv	コンベルビュラス・アーベンシス (<i>Convolvulus arvensis</i>)	10
Ot	栽培からす麦及び野生からす麦 (<i>Avena fatua</i>) 野生からす麦は後発芽試験に、 栽培からす麦は前発芽試験に用いた。	
Dg	ジギタリア・サンヤナリス (<i>Digitaria sanguinalis</i>)	15
Pu	ポア・アニムア (<i>Poa annua</i>)	
St	セタリア・ビリアリス (<i>Setaria viridis</i>)	
Ee	エキノクローア・クラス・ガリ (<i>Echinochloa crus-galli</i>)	20

(100)

Bb	ソーガン・ヘイルペンス (<i>Borghum halapense</i>)	
Ag	ハマムギ (<i>Agropyron repens</i>)	
Cn	ハマスゲ (<i>Cyperus rotundus</i>)	

以下空白

(101)

第 5 表 A

化合物 番 号	通用方法 (参考文) (注1)法	通用量 ($\mu\text{g}/\text{A} \cdot \text{h}$)	試 験 植 物											
			Bb	Sp	Ci	Sy	Ms	Ww	Re	Sa	Ip	Am	Pl	Ca
1	調	2.0	0	0	0	0	4	5	5	2	0	0	0	-
1	調	0.5	0	0	0	0	2	4	5	0	0	0	0	-
1	検	2.0	0	0	0	0	5	4	4	0	0	0	0	0
1	検	0.5	0	1	0	0	5	4	4	0	0	0	0	0
1	検	0.01	0	-	-	-	4	4	0	0	0	0	0	0
12	調	2.0	0	0	0	0	4	4	4	0	0	0	0	0
12	検	2.0	0	0	0	0	4	3	2	1	0	2	0	0
12	検	0.5	0	0	0	0	4	3	2	1	0	2	0	0
14	調	0.2	0	0	0	0	0	5	5	0	0	0	0	0
14	調	0.01	0	0	0	0	0	1	0	1	0	0	0	0
14	検	0.2	0	0	0	0	1	5	4	4	2	0	0	0
14	検	0.01	0	0	0	0	-	4	4	1	0	1	0	-

(102)

第 5 表 A (続)

化合物 番 号	通用方法 (参考文) (注1)	通用量 ($\mu\text{g}/\text{A}\cdot\text{h}$)	試 験 植 物												
			Bb	Sp	Ci	Sy	Ms	Ww	Re	Sa	Ip	Am	Pl	Ca	
16	調	0.2	0	0	0	0	0	4	4	4	-	0	0	0	0
16	調	0.01	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
16	検	0.2	0	0	0	0	0	5	4	4	1	0	0	0	0
16	検	0.01	0	0	0	0	-	4	4	0	0	0	0	0	0
17	調	0.125	0	0	0	0	1	1	0	0	0	0	0	0	0
17	調	0.025	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0	0	0	0
17	検	0.125	0	0	0	0	4	4	3	1	0	3	0	0	0
17	検	0.025	0	0	0	0	0	4	3	1	0	3	0	0	0
18	調	0.125	0	0	0	0	0	1	0	0	3	0	0	0	0
18	調	0.025	0	0	0	0	0	1	0	0	3	0	0	0	0
18	検	0.125	0	0	0	0	0	4	3	0	0	0	0	0	0
18	検	0.025	0	0	0	0	0	4	3	0	0	0	0	0	0
27	調	0.5	-	-	-	-	-	3	4	3	-	-	-	-	-
27	調	0.1	-	-	-	-	-	2	0	0	-	-	-	-	-
27	検	0.5	-	-	-	-	-	4	4	3	-	-	-	-	-
27	検	0.1	-	-	-	-	-	4	4	3	-	-	-	-	-

(103)

以下空白

第5表B

化合物 番号	適用方法 (標準の値) (μg/ha)	試 験 植 物													
		Po	Xa	Ab	Cr	Oi	De	Po	St	Bt	St	Bt	St	Bt	Ca
1	2.0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
1	0.5	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
1	2.0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
1	0.5	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
1	0.01	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
12	2.0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
12	2.0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
12	0.5	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
14	0.2	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
14	0.01	0	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
14	0.2	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
14	0.01	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
16	0.2	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
16	0.01	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
16	0.2	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
16	0.01	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
17	0.125	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
17	0.025	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
17	0.125	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
17	0.025	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
18	0.125	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
18	0.025	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
18	0.125	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
18	0.025	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

(104)

第5表B (続)

化合物 番号	適用方法 (標準の値) (μg/ha)	試 験 植 物													
		Po	Xa	Ab	Cr	Oi	De	Po	St	Bt	St	Bt	St	Bt	Ca
27	0.5	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
27	0.1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
27	0.5	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
27	0.1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

(105)

以下空白

-644-

実施例19

この実施例は、本発明の化合物の、畑に適用された時の選択的除草剤活性を説明するものである。

試験化合物は、実施例17と実質的に同一な方法に従って、製剤化した。

試験する種の植物の種子を、スタンヘイ プレシジョン シーダー (Stanhay Precision Seeder) を用いて、1m間隔の頂上の平らな畝の上に播種した。各畝には2種類の種の植物を播種した。頂上の平らな畝を、試験化合物の適用量に基づき、副区画 (sub plot) に分類した。概ね同一の生長段階に同時に達するように、異なる種の植物は異なる時期に播種した。

製剤化された試験化合物を噴霧すべき頂上の平らな各畝に、1.25m間隔でくいを打ち、4" 0" T-ジョットを2個設置したオックスフォード プレシジョン スプレーヤー (Oxford Precision Sprayer) を用いて幅1mで噴霧した。

前発芽試験においては、種子を播種後、試験化合物を頂上の平らな畝の上に噴霧し、そして噴霧

(106)

してから14、21、35及び63日後に試験植物に対する損傷を目視評価した。得られた結果を、植物の枯れた率(%)で表わして、第6表Aに記載する。

後発芽試験においては、試験植物が2〜3葉令に達した後、頂上の平らな葉に試験化合物を噴霧し、そして噴霧して7、14、28及び56日後に損傷を目視評価した。得られた結果を、植物の枯れた率(%)で表わして、第6表Bに記載する。

試験植物の名前は以下の通りである。

Sy 大豆 (Bethel)

Ct 綿 (Delta Pine 16)

Pa 落花生 (Red. Spanish)

Ms とうもろこし (XL 45)

Se セタリア・アンセプス (Seteria anceps)

Dg ジヤタリア・サンヤナリス (Digitaria sanguinalis)

Ec エキノクロー・タラス・ガリ (Echinochloa crus galli)

Sg キロコシ (Goldrush)

Sh ソーガン・ヘイルペンス (Sorghum halepense)

以下は

(107)

(108)

第 6 表 A
後発芽試験

化合物 番号	通用名 (μg/ha)	DAT*	試験植物の枯れた率 (%)									
			Sy	Ct	Pa	Ms	Se	Dg	Ec	Sg	Sh	
14	20	14	0	5	3	100	-	-	-	100	-	
14	20	21	0	5	5	100	100	100	100	100	100	
14	20	35	0	5	5	100	100	100	100	100	100	
14	20	63	0	0	0	100	100	100	100	100	100	
14	10	14	0	3	0	100	-	-	-	100	-	
14	10	21	3	0	0	100	100	100	100	100	100	
14	10	35	0	3	3	100	100	100	100	100	100	
14	10	63	0	0	0	100	100	100	100	100	100	
14	0.5	14	0	5	0	92	-	-	-	97	-	
14	0.5	21	0	5	3	95	100	100	100	98	100	
14	0.5	35	0	0	0	90	100	100	100	93	100	
14	0.5	63	0	0	0	75	100	100	100	85	100	
UC*	-	14	3	3	3	0	-	-	-	0	-	
UC	-	21	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
UC	-	35	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
UC	-	63	0	0	0	0	0	0	0	0	0	

* DAT - 化合物処理後、評価をするまでの日数
+ U C - 未処理群

(109)

第 6 表 B
後発芽試験

化合物 番号	通用名 (μg/ha)	DAT*	試験植物の枯れた率 (%)									
			Sy	Ct	Pa	Ms	Se	Dg	Ec	Sg	Sh	
14	20	7	28	5	8	93	80	75	55	80	-	
14	20	14	10	3	3	100	98	100	100	100	-	
14	20	28	20	8	0	100	100	100	100	100	-	
14	20	56	0	0	0	100	100	100	100	100	-	
14	10	7	13	5	5	88	65	63	48	88	100	
14	10	14	5	3	8	100	98	100	100	100	100	
14	10	28	8	3	3	100	100	100	100	100	100	
14	10	56	0	0	0	100	100	100	100	100	100	
14	0.5	7	5	3	3	65	63	55	55	78	-	
14	0.5	14	5	3	3	100	95	99	100	100	100	
14	0.5	28	5	3	0	100	98	100	100	100	100	
14	0.5	56	0	0	0	100	100	100	100	100	100	
UC*	-	7	60	0	0	0	0	0	0	0	0	
UC	-	14	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
UC	-	28	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
UC	-	56	0	0	0	0	0	0	0	0	0	

* DAT - 化合物処理後、評価をするまでの日数
+ U C - 未処理群

(110)

第1頁の続き

優先権主張 ②1980年4月11日③オーストラ
リア(AU)④PE. 3093

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☒ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER: _____**

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.